



TUGAS AKHIR - SF 141501

## SINTESIS DAN KARAKTERISASI RELAXOR SISTEM $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $BiFeO_3$ (KNN-BFO)

Nurul Amalia Triyuliana  
NRP 1113 100 040

Dosen Pembimbing  
Prof. Dr. Suasmoro, DEA

Departemen Fisika  
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Surabaya 2017



**TUGAS AKHIR - SF 141501**

## **SINTESIS DAN KARAKTERISASI RELAXOR SISTEM $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $BiFeO_3$ (KNN-BFO)**

Nurul Amalia Triyuliana  
NRP 1113100 040

Dosen Pembimbing  
Prof. Dr. Suasmoro, DEA

Departemen Fisika  
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Surabaya 2017



**FINAL PROJECT - SF 141501**

## **SINTESIS DAN KARAKTERISASI RELAXOR SISTEM $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $BiFeO_3$ (KNN-BFO)**

Nurul Amalia Triyuliana  
NRP 1113100 040

Advisor  
Prof. Dr. Suasmoro, DEA

Department of Physics  
Faculty of Mathematics and Natural Sciences  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Surabaya 2017

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI RELAXOR  
SISTEM  $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $BiFeO_3$  (KNN-BFO)**

**TUGAS AKHIR**

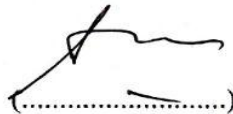
Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat  
Memperoleh Gelar Sarjana Sains  
pada  
Bidang Fisika Material  
Program Studi S-1 Departemen Fisika  
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh :

**NURUL AMALIA TRIYULIANA**  
NRP. 1113 100 040

Disetujui oleh Tim Pembimbing Tugas Akhir

**Prof. Dr. Suasgoro, DEA**  
NIP. 19550210 198010.1.001



# SINTESIS DAN KARAKTERISASI RELAXOR SISTEM $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $BiFeO_3$ (KNN-BFO)

Nama : Nurul Amalia Triyuliana  
NRP : 1113100040  
Departemen : Fisika, FMIPA-ITS  
Pembimbing : Prof. Dr. Suasmoro, DEA

## Abstrak

*Sintesis material keramik  $(1-x)K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3 - xBiFeO_3$  (KNN -BFO) dengan variasi doping  $\{x:0,025; 0,05 \text{ dan } 0,075\}$  telah berhasil dilakukan dengan metode reaksi padat. Fasa KNN - BFO terbentuk pada temperatur kalsinasi  $575^\circ\text{C}$  selama 2 jam dan sintering  $1100^\circ\text{C}$  selama 6 jam. Pola hasil XRD pada KNN - BFO sebelum dan sesudah ditambahkan BFO telah diteliti dengan menggunakan metode Rietveld refinement .Diketahui bahwa adanya doping BFO pada KNN menyebabkan perubahan struktur Kristal dari perovskit orthorombik menjadi perovskite tetragonal dengan nilai parameter kisi yang berbeda pada setiap komposisi. Terjadi penurunan tetragonalitas seiring bertambahnya komposisi dopan. Komposisi dopan juga mempengaruhi nilai densitas pada KNN-BFO. Analisis sifat listrik juga dilakukan menggunakan impedance analyzer. Ditunjukan bahwa KNN memiliki dua temperatur Curie karena transisi fasa orthorombik – tetragonal pada temperature  $220^\circ\text{C}$  dan tetragonal – kubik  $T_c$  pada  $440^\circ\text{C}$  serta menunjukan perilaku feroelektrik. Sedangkan adanya penambahan dopan BFO merubah temperatur transisi fasa dan menunjukan adanya perilaku relaxor pada KNN yang dibuktikan dengan nilai gamma ( $\gamma$ ) yang lebih besar dari satu.*

**Kata kunci:** *doping, perovskite, strukturkristal, relaxor*

# SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF RELAXOR SYSTEM $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $BiFeO_3$ (KNN-BFO)

**Name** : Nurul Amalia Triyuliana  
**NRP** : 1113100040  
**Department** : Physics, FMIPA-ITS  
**Advisor** : Prof. Dr. Suasmoro, DEA

## Abstract

*Synthesis of ceramic material  $(1-x)K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $xBiFeO_3$  (KNN-BFO) with doping variation  $\{x: 0,025; 0.05 \text{ and } 0.075\}$  was successfully performed by solid state reaction. The KNN-BFO phase was formed at a temperature of calcination of  $575^\circ\text{C}$  for 2 hours and sintering  $1100^\circ\text{C}$  for 6 hours. The XRD pattern on KNN-BFO before and after BFO added was investigated using rietveldrefinement method. Known doping of BFO in KNN led change of crystal structure from perovskite orthorombik become perovskite tetragonal with different lattice parameter at each composition. The degeneration of tetragonality due to dopant composition. Dopant composition also affects the density in KNN-BFO. Electrical properties analysis is also done using impedance analyzer. It is shown that KNN has two Curie temperatures because of orthorombic-tetragonal phase transitions at  $220^\circ\text{C}$  and tetragonal-cubic  $T_c$  at  $440^\circ\text{C}$  and indicates ferroelectric behavior. On the other hand, the addition of BFO dopant changes the phase transition temperature and shows the relaxation behavior of KNN as evidenced by the value of gamma ( $\gamma$ ) more than one*

**Keywords:** crystal structure, doping, perovskite, relaxor.

## KATA PENGANTAR

Puji syukur Alhamdulillah, kami ucapkan kepada Allah SWT karena atas berkah, rahmat dan petunjukNya yang diberikan kepada kami sehingga laporan Tugas Akhir (TA) ini dapat terselesaikan. Sholawat dan salam senantiasa kami sampaikan kepada Rasulullah Muhammad SAW yang telah menjadi teladan dan menuntun kami ke jaman yang terang benderang dengan cahaya iman dan ilmu pengetahuan.

Atas izin Allah SWT, kami dapat menyelesaikan Tugas Akhir (TA) dengan judul **“Sintesis Dan Karakterisasi Relaxor Sistem  $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3 - BiFeO_3$  (KNN-BFO)”**, sebagai syarat untuk menyelesaikan pendidikan strata satu Departemen Fisika ITS. Pembuatan laporan ini juga melibatkan berbagai pihak yang senantiasa membantu secara ilmu, moral dan materi. Keikhlasan dalam membantu kami menyelesaikan laporan ini, semoga mendapatkan balasan yang baik dari Allah SWT. Dengan penuh suka cita, kami sampaikan terimakasih kepada :

1. Orang tua, saudaradankeluarga yang telah memberikan dukungan berupa doa, semangat, moral maupun materi.
2. Prof. Dr. Suasmoro, DEA selaku dosen pembimbing yang telah memberikan arahan serta bimbingan dalam penelitian dan penyusunan tugas akhir ini.
3. Dr. Agus Purwanto, DEA selaku dosen wali atas bimbingannya selama 4 tahun penulis belajar di Departemen Fisika ITS.
4. Umi Nuraini yang banyak mendukung, memberikan masukan, diskusi, semangat dan inspirasi.
5. Ach. Fakhrrur Razi yang banyak memberikan semangat, doa dan waktunya dalam proses penyelesaian Tugas Akhir ini..
6. Tim riset di laboratorium keramik, mulai dari S1 (Dian Zerlitha A., Ika Widya Wahyu N., Setiyono, Hilda A., Yhuanita nurul K. Dan Dani A.), S2 (Sefrilita Risqi Adikaning Rani dan Pulung Subuh Nur Baity), dan S3 (Fitriana dan Umi Nuraini) yang banyak memberi masukan dan diskusi dalam melaksanakan penelitian.

7. Rahmawati Maisaroh H., Lailatus Sulalah H, Fatimatus Zahroh dan Diah Apriliani P.L. yang telah memberikan semangat, doa dan waktunya selama masa kuliah di ITS.
8. Masyitatus Daris S. Yang telah memberikan waktu, tempat doa dan semangatnya selama masa perkuliahan di Fisika ITS.
9. Teman – teman SUPERNOVA FISIKA 2013 dan berbagai pihak yang telah terlibat dan mendukung penelitian dan penyusunan tugas akhir ini.

Dalam penyusunan laporan ini kami menyadari bahwa masih banyak kekurangan yang harus diperbaiki. Oleh karena itu, saran dan kritik yang membangun sangat kami harapkan. Diluar kekurangan tersebut, semoga laporan ini dapat menjadi referensi masyarakat luas. Amin.

Surabaya, 16Juni 2017  
Penulis  
Nurul Amalia Triyuliana



## DAFTAR ISI

Halaman Judul .....	i
Cover Page.....	ii
Lembar Pengesahan.....	iii
Abstrak .....	iv
Abstract.....	v
Kata Pengantar .....	vi
Daftar Isi .....	viii
Daftar Gambar.....	x
Daftar Tabel .....	xii
Daftar Lampiran.....	xiii

### BAB I PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang.....	1
1.2 Permasalahan .....	2
1.3 Tujuan Penelitian .....	3
1.4 Batasan Masalah .....	3
1.5 Manfaat Penelitian .....	3
1.6 Sistematika Penulisan .....	3

### BAB II TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Karakteristik (K,Na)NbO <sub>3</sub> .....	5
2.2 Karakteristik BiFeO <sub>3</sub> .....	7
2.3 Perovskite .....	11
2.4 Relaxor Feroelektrik .....	12

### BAB III METODOLOGI PENELITIAN

3.1 Peralatan dan Bahan.....	15
3.2 Prosedur Pembuatan .....	15
3.2.1 Sintesis K <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> NbO <sub>3</sub> (KNN).....	15
3.2.2 Sintesis BiFeO <sub>3</sub> (BFO).....	16
3.2.3 Sintesis (1-x)KNN-xBFO.....	17
3.3 Karakterisasi Material.....	19
3.3.1 Analisis Struktur .....	19

3.3.2 Pengukuran Densitas .....	19
3.3.3 Pengujian Listrik .....	20
<b>BAB IV ANALISA DATA DAN PEMBAHASAN</b>	
4.1 Hasil Sintesis KNN-BFO .....	21
4.2 Analisis Hasil XRD .....	25
4.3 Analisis Uji Densitas .....	30
4.4 Karakterisasi Sifat Listrik .....	32
<b>BAB V KESIMPULAN</b>	
5.1 Kesimpulan .....	39
5.2 Saran .....	39
<b>DAFTAR PUSTAKA .....</b>	<b>41</b>
<b>LAMPIRAN.....</b>	<b>45</b>
<b>BIOGRAFI PENULIS .....</b>	<b>59</b>

## DAFTAR GAMBAR

<b>Gambar 2.1</b>	Struktur atom KNN.....	6
<b>Gambar 2.2</b>	Diagram fase KNN .....	7
<b>Gambar 2.3</b>	Struktur atom BiFeO <sub>3</sub> .....	9
<b>Gambar 2.4</b>	Diagram fase BiFeO <sub>3</sub> .....	10
<b>Gambar 2.5</b>	Struktur Perovskite (kiri) pada fasa kubik atom B berada di pusat kubik, (kanan) pada fasa tetragonal atom B bergeser sehingga terbentuk dipol.....	11
<b>Gambar 2.6</b>	Perbedaan antara Ferolektrik dan Relaxor .....	13
<b>Gambar 3.1</b>	Skema sintesisKNN dengan metode solid <i>state</i> ..	16
<b>Gambar 3.2</b>	Skema sintesisBFODengan metode <i>combustion reaction</i> .....	17
<b>Gambar 3.3</b>	Skema sintesisKNN-BFO dengan metode solid <i>state</i> .....	18
<b>Gambar 4.1</b>	Kurva hasil pengujian TGA-DTA 50 mg KNN...	22
<b>Gambar 4.2</b>	Grafik pengurangan massa terhadap temperatur beberapa unsur alkali .....	23
<b>Gambar 4.3</b>	Hasil pola difraksi KNN kalsinasi 700°C 2 jam ..	26
<b>Gambar 4.4</b>	Pola difraksi pada material (1-x)KNN-xBFO.....	28
<b>Gambar 4.5</b>	Grafik hubungan tetragonalitas terhadap komposisi BFO pada material (1-x)KNN-xBFO.	29
<b>Gambar 4.6</b>	Pengaruh komposisi dan suhu sintering terhadap nilai densitas .....	32
<b>Gambar 4.7</b>	Grafik hubungan permitivitas relatif terhadap temperatur pada frekuensi 1,273 MHz material (1-x)KNN-xBFO.....	34
<b>Gambar4.8</b>	Grafik hubungan permitivitas relatif terhadap temperatur pada material (1-x)KNN-xBFO dengan x=0,025.....	34
<b>Gambar4.9</b>	Grafik hubungan permitivitas relatif terhadap temperatur pada material (1-x)KNN-xBFO dengan x=0,05.....	35

<b>Gambar4.10</b>	Grafik hubungan permitivitas relatif terhadap temperatur pada material $(1-x)\text{KNN}-x\text{BFO}$ dengan $x=0,075$ .....	35
<b>Gambar 4.11</b>	Grafik hubungan <i>relaxor</i> feroelektrik pada material $(1-x)\text{KNN}-x\text{BFO}$ .....	37

## DAFTAR TABEL

<b>Tabel 2.1</b>	Data kristalografi $\text{BiFeO}_3$ .....	8
<b>Tabel 4.1</b>	Hasil analisa kuantitatif pada rietica sampel KNN ...	26
<b>Tabel 4.2</b>	Hasil Analisa kuantitatif pada Rietica sampel (1-x)KNN-xBFO .....	28
<b>Tabel 4.3</b>	Hasil uji densitas pada material (1-x)KNN-xBFO....	31
<b>Tabel 4.4</b>	Nilai permitivitas relatif dan T max pada setiap komposisi .....	36
<b>Tabel 4.5</b>	Nilai $\gamma$ dan $R^2$ pada material (1-x)KNN-xBFO .....	37

## DAFTAR LAMPIRAN

<b>Lampiran A</b>	Data Unsur-unsur .....	45
<b>Lampiran B</b>	Data Jari-jari Ion (Å) .....	45
<b>Lampiran C</b>	Hasil Analisa Kualitatif dengan menggunakan <i>Software Match!</i> .....	46
<b>Lampiran D</b>	Data COD ( <i>Crystallography Open Database</i> ) Sampel KNN .....	48

# BAB I

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Material feroelektrik merupakan bahan yang memiliki kemampuan untuk melakukan polarisasi spontan tanpa adanya medan luar yang diberikan dimana polarisasi spontan sangat menentukan kualitas dari suatu material. Penelitian feroelektrik telah dikembangkan sejak tahun 1960 karena bahan tersebut dapat dimanfaatkan untuk berbagai keperluan di dunia elektronik dan diprediksikan memiliki keunggulan dalam hal penyimpanan memori (Umiahi dkk., 2000). Berbagai macam bahan feroelektrik telah ditemukan seperti  $\text{BaTiO}_3$ ,  $\text{PbTiO}_3$ ,  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$  dan lain sebagainya.

*Relaxor* merupakan bagian dari feroelektrik yang memiliki struktur dan sifat khas. Beberapa hal yang dapat mencerminkan sifat *relaxor* adalah adanya kelainan kisi serta keberadaan *polar nano region* (PNR) pada temperatur yang lebih tinggi dari temperatur maksimum ( $T_m$ ) atau disebut temperatur *curie* ( $T_c$ ) pada feroelektrik. Koefisien respon yang sangat tinggi dan lebar yang disempurnakan dari rezim  $T_m$  membuat *relaxor* populer sebagai sistem dari aplikasi pizelektrik dan sensor seperti *scanning probe microscopy*, *ink jet printer*, *adaptiv optic*, *micromotor* dan *vibration sensor* (Kleeman, 2006).

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan oleh Ren dkk (2009) didapatkan bahwa material ferroelektrik dengan konstanta dielektrik yang unggul adalah  $\text{PbZrTiO}_3$  (PZT). Namun akhir-akhir ini masyarakat mulai sadar akan bahaya timbal yang sangat beracun bagi kesehatan dan lingkungan. Para ilmuwan telah meneliti berbagai material keramik bebas timbal lain seperti  $\text{KNaNbO}_3$  (KNN) yang berbasis niobat dengan penambahan bahan dan metode yang bervariasi dengan tujuan agar bisa mendapatkan hasil yang lebih baik atau setidaknya sama dengan material  $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ . Beberapa penelitian lain yang telah dilakukan yaitu oleh Zhang dkk (2006) yang mensintesis  $(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{NbO}_3$  dan di *mixing* dengan  $0.052\text{LiSbO}_3$  dengan

metode *solid state* menghasilkan material pizoelektrik dengan struktur *perovskite* pada temperatur Curie  $368^{\circ}\text{C}$  dengan fase transisi *orthorhombic-tetragonal polymorphic* ( $T_{o-T}$ ) pada temperatur sekitar  $35^{\circ}\text{C}$ . Selain itu, penelitian Saito dkk dengan pencampuran KNN dan (Li, Sb, Ta) menghasilkan koefisien pizoelektrik  $d_{33}$  sekitar  $416 \text{ pC/N}$  yang mendekati koefisien pizoelektrik PZT.

$\text{BiFeO}_3$  yang disingkat BFO merupakan material *multiferroic* yang mampu berperilaku ganda sebagai bahan feroelektrik dan feromagneta pada saat yang bersamaan (Lakshmi et al. 2015). BFO merupakan material feroelektrik dengan struktur perovskite ( $\text{ABO}_3$ ) yang memiliki temperatur Curie tinggi ( $T_c \sim 830^{\circ}\text{C}$ ) dan *G-Type antiferromagnetic* dibawah Temperatur Neel ( $T_N \sim 370^{\circ}\text{C}$ ) (Chen et al. 2012). Interaksi antara medan listrik dan medan magnet pada material ini membentuk *Magnetoelectric Effect* (ME) yang sangat menarik untuk diteliti dan dikembangkan. Efek ini memungkinkan dalam mengontrol medan listrik dan magnetik melalui sifat magnetik dan listrik dari material itu sendiri (Ma, Shi, and Nan 2007). Kombinasi dari keduanya akan memberikan pengaruh positif pada peningkatan sifat feromagnetik, feroelektrik maupun piezoelektriknya. Berdasarkan karakteristik yang dimiliki oleh BFO maka diharapkan apabila di *mixing* dengan KNN akan memberikan sifat listrik dan efek pizoelektrik yang lebih baik. Oleh karena itu, pada penelitian ini dilakukan pencampuran pada material  $1-x\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3-x\text{BiFeO}_3$  dengan komposisi  $\{x = 0,025; 0,05; 0,075\}$  untuk mengetahui efek pencampuran BFO terhadap karakteristik KNN.

## 1.2 Permasalahan

Rumusan masalah yang akan mendasari penelitian ini adalah:

1. Bagaimana pengaruh penambahan  $\text{BiFeO}_3$  terhadap struktur dan nilai densitas pada material  $(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{NbO}_3$  ?



2. Bagaimana sifat relaxor feroelektrik dari pencampuran material  $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3$  -  $BiFeO_3$ ?

### 1.3 Tujuan Penelitian

Adapun yang menjadi tujuan dalam penelitian ini adalah:

1. Mengetahui pengaruh penambahan  $BiFeO_3$  terhadap struktur dan nilai densitas pada material  $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$
2. Melakukan analisis sifat listrik yaitu relaxor feroelektrik pada pencampuran material  $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$  -  $BiFeO_3$

### 1.4 Batasan Masalah

Pada penelitian ini permasalahan dibatasi pada variasi komposisi  $1-x(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3-xBiFeO_3$  yaitu  $\{x = 0,025; 0,05; 0,075\}$  dengan karakterisasi sifat kelistrikan yang meliputi permitivitas relatif dan *relaxor*.

### 1.5 Manfaat Penelitian

Penelitian ini diharapkan dapat bermanfaat bagi pihak Institut, peneliti, dan juga pembaca. Meningkatkan *soft skill* dalam bekerja dilaboratorium sehingga dapat mencari jalan keluar dari permasalahan. Selain itu penelitian ini memberikan pemahaman mengenai sifat kelistrikan dan kemagnetan dari material  $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3-BiFeO_3$  sehingga dapat digunakan sebagai material alternatif di dunia industri elektronik.

### 1.6 Sistematika Laporan

Penulisan Tugas akhir ini terdiri dari abstrak yang berisi gambaran umum dari penelitian ini. Bab I pendahuluan yang memuat latar belakang, perumusan masalah, tujuan penelitian, manfaat penelitian, serta sistematika penulisan. Bab II tinjauan pustaka berisi tentang dasar-dasar teori yang digunakan sebagai acuan dari penelitian, Bab III metodologi penelitian, Bab IV hasil penelitian dan pembahasannya, dan Bab V kesimpulan dan saran.

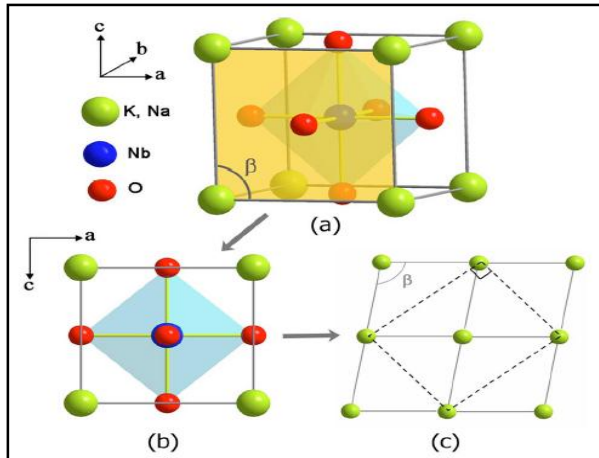
***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## BAB II TINJAUAN PUSTAKA

### 2.1 Karakteristik (K,Na)NbO<sub>3</sub>

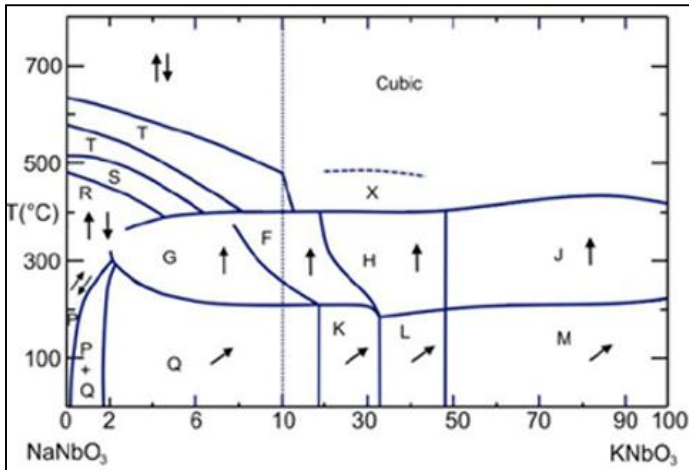
Material (K,Na)NbO<sub>3</sub> yang disingkat dengan KNN merupakan hasil sintesis dari beberapa senyawa karbonatnya yang meliputi K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> dan Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> pada suhu ruang (Cheo et al, 2012). KNN adalah larutan padat dari material feroelektrik potasium niobat (KN) dan material anti-feroelektrik sodium niobat. Material ini memiliki *morphotropic phase boundary* (MPB) ketika rasio Na/K adalah ~50/50 (Thomas, R. 2007). KNN memiliki struktur *orthorhombic perovskite* (ABO<sub>3</sub>) dengan parameter kisi  $a=5,635 \text{ \AA}$ ,  $b=3,971 \text{ \AA}$  dan  $c=5,721 \text{ \AA}$  (Cheo et al, 2012). Model struktur *perovskite* dengan atom oksigen berada disetiap muka, atom A berada disetiap pojok dan atom B berada di pusat. Material dengan struktur perovskite dapat menyimpan muatan listrik dengan baik akibat terbentuknya polarisasi pada bahan.

Material KNN pertama kali disintesis pada tahun 1960 oleh Jaeger dan Egerton, Haertling, Egerton dan Dilton, dan Egerton dan Bieling yang menghasilkan koefisien pizoelektrik  $d_{33}$  hanya sekitar 100 pC/N (Zhang, S. 2006). Untuk meningkatkan *sinterability* dan sifat *pizoelektrik* dari KNN dapat dilakukan penambahan atau substitusi dari beberapa kation pada situs A atau B (S. Z. Ahn, et al. 1987). Berdasarkan penelitian Kosec dkk diperoleh bahwa *sinterability* dari KNN dapat meningkat dengan penggabungan dari penambahan Nb +5 pada situs B dan Mg +5 pada situs A. Hal ini juga diketahui bahwa tingkat densifikasi dipengaruhi terutama oleh ketidaksempurnaan konsentrasi dalam kisi kristal. Dilaporkan juga bahwa *sinterability* dari struktur kisi ABO<sub>3</sub> dapat ditingkatkan dengan membentuk *vacancy* pada situs A yang dapat dibuat dengan penambahan atau substitusi ion B pada situs A dengan kation yang memiliki valensi lebih tinggi.



**Gambar 2.1** Struktur atom KNN (Group, Schwarz. Instituto Superior Tecnico)

Pada gambar 2.1 merupakan struktur atom KNN pada suhu ruang. Dimana pada suhu ruang, KNN memiliki struktur *orthorhombic perovskite* (ABO<sub>3</sub>) seperti gambar (a) yang memiliki simetri monoklinik dengan parameter kisi  $a_m = c_m > b_m$  dimana  $b_m$  tegak lurus dengan bidang  $a_m c_m$  dengan sudut  $\beta$  yang lebih sedikit dari 90°. Dapat dilihat proyeksi dari subsel sepanjang sumbu  $b_m$  pada gambar (b). Ketika sudut beta mendekati 90° maka akan terlihat sumbu  $a_m$  juga tegak lurus pada sumbu  $c_m$ . sehingga untuk melihat hubungan geometris yang lebih jelas, kita dapat memperbesar sudut  $\beta$  lebih dari 90° dan menggambarkan proyeksi dari empat subsel perovskite yang berdekatan secara bersamaan, tetapi dengan menghilangkan atom Nb dan O seperti pada gambar (c). Seperti pada sumbu  $a_m$  yang panjangnya sama dengan sumbu  $c_m$ , garis diagonalnya dihubungkan oleh garis putus-putus di (c) yang membentuk persegi empat yang merupakan proyeksi dari unit sel KNN sepanjang sumbu  $b_m$ . Oleh Sebab itu mudah untuk memahami bahwa jenis subsek perovskite dari KNN adalah monoklinik dengan unit selnya memiliki simetri *orthorhombic* pada temperatur kamar (Group, Schwarz. Instituto Superior Tecnico)



**Gambar 2.2** diagram fase KNN (Group, Schwarz. Instituto Superior Tecnico)

$\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{NbO}_3$  memiliki beberapa fase transisi induksi termal dan MPB (*morphotropic phase boundaries*) yang dirangkum oleh Ahtee dkk seperti pada gambar 2.2. Daerah yang ditandai dengan huruf Q, K dan L adalah feroelektrik monoklinik, M dan G adalah feroelektrik ortorombik, F, H dan J adalah feroelektrik tetragonal dan P adalah antiferroelektrik ortorombik. Pada suhu ruang, MPB terletak pada 17,5%, 32,5% dan 47,5% berisi NN. Yang perlu diperhatikan adalah komposisi temperatur fase transisi yang tidak tetap antara fase feroelektrik  $\sim 200^\circ\text{C}$  dan antara fase feroelektrik dan fase paraelektrik  $\sim 400^\circ\text{C}$  (berlawanan dengan komposisi suhu transisi tetap pada PZT). Hanya dengan sedikit substitusi natrium kalium dalam  $\text{NaNbO}_3$  menyebabkan transisi pada feroelektrik (daerah Q) dari natrium kalium antiferroelektrik murni (daerah P) (Ahtee, et all. 1976).

## 2.2 Karakteristik $\text{BiFeO}_3$

*Bismuth ferrite* ( $\text{BiFeO}_3$ ) adalah salah satu contoh dari bahan multiferroik yang memiliki sifat listrik dan magnet secara bersamaan. Bahan ini memiliki kontrol elektrik pada situs A

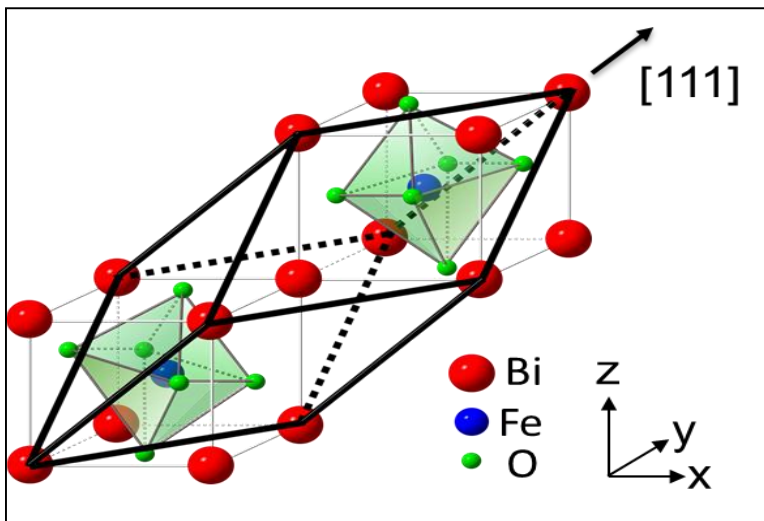
sedangkan situs B mengontrol sifat magnetik dari bahan tersebut. Hal ini menunjukkan jenis-G *antiferromagnetic* pada temperatur Neel dibawah ( $T_N = 370^{\circ}\text{C}$ ) dan *ferroelectricity* pada temperatur Curie dibawah ( $T_C = 830^{\circ}\text{C}$ ).  $\text{BiFeO}_3$  dalam bentuk serbuk menunjukkan magnetisasi sangat rendah karena struktur yang berputar spiral (Sosnowska, I.1982,).

Pada suhu ruang BFO memiliki struktur *perovskite rhombohedral* dengan group ruang  $R3c$  dengan parameter kisi ditunjukan pada tabel 2.1. Ion-ion Bi dan O secara bersamaan membentuk *cubis close packing* dengan ion Fe menempati posisi *interstitial* oktahedron. Struktur *perovskite* dapat dilihat pada gambar 2.3 (Deepam, 2008). Secara umum *perovskite* merupakan oksida logam yang memiliki rumus umum  $\text{ABO}_3$  dengan A adalah ion-ion logam blok s-, d-, atau f- yang berukuran lebih besar, sedangkan B merupakan ion – ion logam transisi (Tien-Thao dkk,2007). Jumlah muatan kation A dan B adalah +6 yang dapat tersusun dari kation yang bermuatan (3+3), (2+4) atau (1+5), hal tersebut agar terjadi keseimbangan muatan -6 yang dibawa oleh tiga ion oksigen (wold, 1993).

**Tabel 2.1** Data kristalografi  $\text{BiFeO}_3$

$\text{BiFeO}_3$	
Sistem kristal	<i>Rhombohedral</i>
<i>Space group</i>	$R3c$ (161)
Parameter kisi	$a = b = 5,5768 \text{ \AA} ; c = 13,8642 \text{ \AA}$
Volume sel	$373,418 \text{ \AA}^3$
Rf (%)	3,95
$R_{\text{Bragg}}$	4,71
$R_p$	7,72
$R_{\text{wp}}$	9,95
$X^2$	1,19

Sumber : Bellakki, 2009

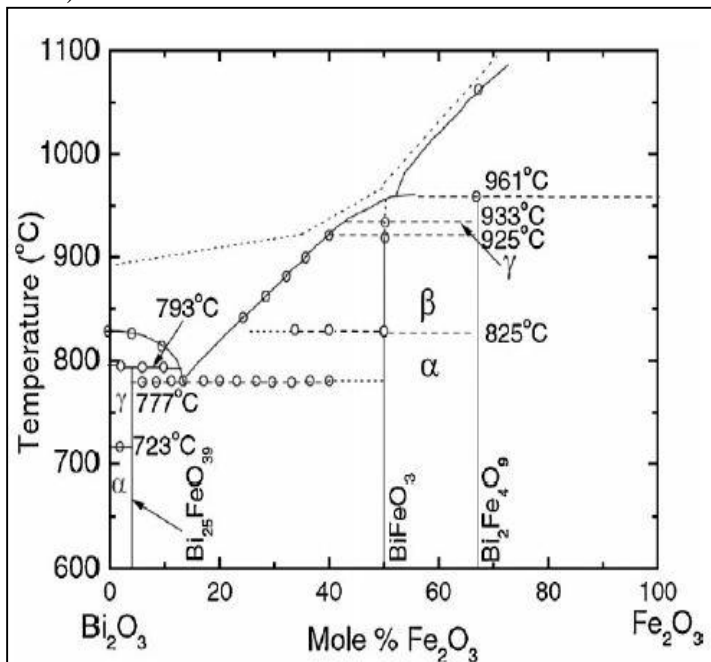


**Gambar 2.3** Struktur atom BiFeO<sub>3</sub> (Neaton, 2005)

Nicola Hill menyatakan bahwa beberapa material yang feromagnetik dan feroelektrik ditentukan oleh transisi oksida logam khususnya *perovskite*. Telah diteliti bahwa feroelektrik mempunyai ion dengan orbital elektron  $d^0$  sedangkan magnet orbital elektron  $d^1$ , dimana  $j$  tidak sama dengan nol sehingga pada struktur *perovskite* situs A memberikan feroelektrik dan situs B memberikan memberikan sifat feromagnetik. Oleh karena itu, dapat disimpulkan bahwa pada BiFeO<sub>3</sub>, polarisasi disebabkan oleh pasangan elektron (orbital  $s^2$ ) dari Bi<sup>3+</sup> sehingga polarisasi dari situs A sedangkan magnetisasi berasal dari situs B (Hill, 2000).

Pembentukan fase pengotor selama persiapan merupakan kelemahan lain pada sistem berbasis BiFeO<sub>3</sub>. Dari diagram fase Bi-Fe-O diketahui bahwa 113 bentuk fase *perovskite* mendekati 800 °C yang jauh di atas titik leleh Bi ( $\approx 271$  °C). Fase pengotor Besi yang banyak seperti Bi<sub>2</sub>Be<sub>4</sub>O<sub>9</sub> dan yang lainnya sering ditemukan berkembang bersama dengan fase *perovskite* murni yang disebabkan karena kehilangan Bi selama persiapan material

serbuk  $\text{BiFeO}_3$ . Kesulitan-kesulitan ini dapat sepenuhnya atau sebagian dihapus oleh doping pada Bi dan Fe atau dengan mempersiapkan bahan nanosized pada suhu rendah. Peningkatan sifat magnetik dalam fase tunggal  $\text{BiFeO}_3$  keramik telah ditemukan oleh A-situs (situs Bi) yang didoping dengan 3+ atom yang berasal dari alam seperti (La, Nd, Y dan yang lainnya) dan 2 + atom alkali tanah (Ca, Ba, Sr dll) [13/08]. Situs B (Fe-situs) doping dari unsur logam transisi seperti Cr, Mn, Ti, Zr dll juga mengakibatkan menjadi nilai magnetisasi yang lebih tinggi. Sifat struktural dan magnetik nanopartikel  $\text{BiFeO}_3$  sangat tergantung pada ukuran partikel, morfologi, doping, tekanan dan yang lainnya, yang dapat dikendalikan selama proses sintesis (Kumar, M.2006).



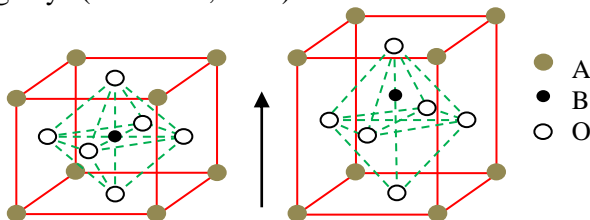
**Gambar 2.4** Diagram fase  $\text{BiFeO}_3$  (C, Gustau. 2009)

## 2.3 Perovskite



Material berbasis niobat diketahui memiliki struktur perovskite. Perovskite merupakan nama dari kristal dengan rumus umum  $ABO_3$ . Model struktur perovskite standar berbasis kubik dengan atom oksigen berada di setiap muka kubus, atom A berada di setiap pojok kubus dan atom B berada di pusat kubus. Namun, material berstruktur perovskite dapat memiliki basis kisi kubik, tetragonal, orthorombik dan sebagainya (Suasmoro, 2000).

Bahan feroelektrik memiliki struktur perovskite. Material dengan struktur perovskite dapat menyimpan muatan listrik dengan baik akibat terbentuknya polarisasi pada bahan. Mekanisme terbentuknya polarisasi dapat dijelaskan akibat adanya transisi fasa kubik menjadi tetragonal pada temperatur tertentu yang dikenal dengan temperatur Curie. Sehingga dengan pemberian medan listrik yang relatif kecil saja, akan terjadi pergeseran kation di pusat kisi akibat interaksi coulomb sehingga terjadi polarisasi pada bahan. Polarisasi akan menimbulkan distorsi Kristal yang membuat material tersebut bersifat dipol sehingga pada skala makroskopis terjadi pemisahan muatan positif dan negatif yang menyebabkan material bersifat dielektrik. Karakteristik dielektrik material perovskite menjadikan material tersebut berpotensi diaplikasikan secara luas seperti pada kapasitor, termistor, peralatan elektro-optik, *non-volatile* DRAM (*dynamic random access memory*), aplikasi ultrasonik, *transducer* dan sebagainya (Suasmoro, 2000).



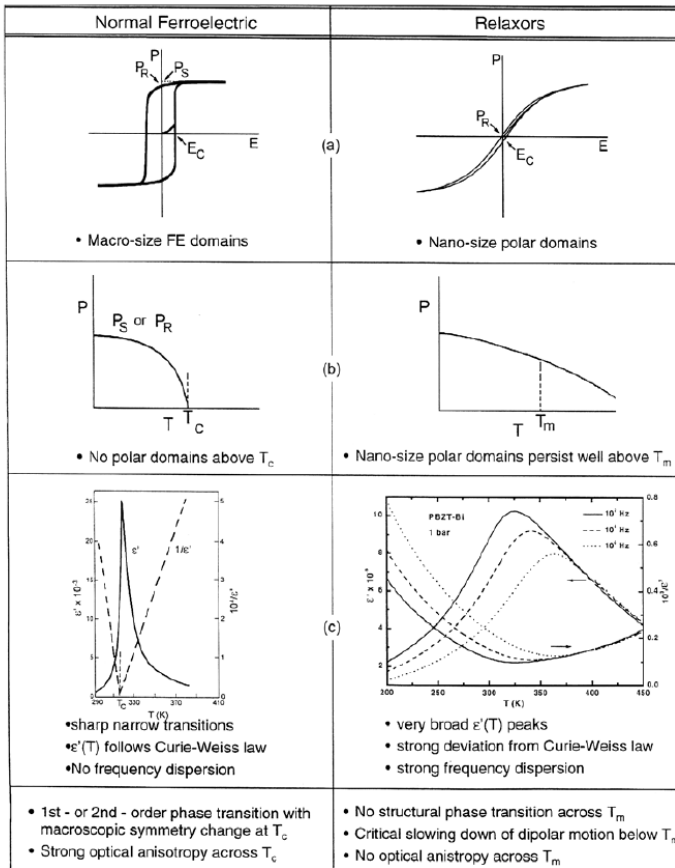
**Gambar 2.5** Struktur Perovskite (kiri) pada fasa kubik atom B berada di pusat kubik, (kanan) pada fasa tetragonal atom B bergeser sehingga terbentuk dipol

## 2.4 Relaxor Feroelektrik

Feroelektrik merupakan jenis material dielektrik yang menunjukkan polarisasi spontan. Polarisasi spontan adalah polarisasi yang terjadi ketika tidak adanya medan listrik. Polarisasi spontan merupakan efek dari penempatan ion  $\text{Ba}^{2+}$ ,  $\text{Ti}^{4+}$ , dan  $\text{O}^{2-}$  dalam sel unit. Polarisasi spontan material feroelektrik merupakan hasil dari interaksi antara dipol-dipol magnet yang berdekatan dengan semua arah dipol yang sama. Contoh material feroelektrik yaitu kalium niobat ( $\text{KNbO}_3$ ), kalium dihidrogen fosfat ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ), dan timbal zirkonat-titanat ( $\text{Pb}[\text{ZrO}_3, \text{TiO}_3]$ ). Feroelektrik memiliki konstanta dielektrik yang tinggi jika diaplikasikan pada frekuensi medan yang relatif rendah, contohnya pada temperatur ruang,  $\epsilon_r$  untuk barium titanat sebesar 5000. Oleh karena itu, kapasitor dibuat dari material dielektrik dengan sifat feroelektrik (Callister, 2008).

*Relaxor* merupakan bagian dari feroelektrik tak beraturan yang memiliki sifat dan struktur yang khas. Pada temperatur tinggi menunjukkan fase paraelektrik non-polar yang menyerupai fase paraelektrik dari feroelektrik dalam semua aspek. Setelah pendinginan, terjadi perubahan menjadi keadaan *ergodic relaxor* (ER) dimana daerah polar dengan ukuran nanometer muncul momen dipol dengan arah penyebaran yang acak. Temperatur pada saat perubahan disebut temperatur burn ( $T_B$ ). Pada temperatur yang mendekati  $T_B$  pada *Polar Nano Region* (PNR) berperilaku *ergodic* dan berubah-ubah. Pada saat pendinginan, dinamikanya melambat secara drastis dan pada temperatur rendah  $T_f$  (*freezing temperatur*) PNR mengalami pembekuan. Dinamika pembekuan dipol dikaitkan dengan puncak yang lebar dan luas pada temperatur yang bergantung konstanta dielektrik ( $\epsilon$ ) dengan karakterisasi penyebaran yang diamati pada semua frekuensi. Puncak tersebut sama dengan besar puncak pada Temperatur Curie ( $T_c$ ) pada perovskite feroelektrik normal, namun berbeda dengan feroelektrik normal yang difusi tinggi dan temperatur  $T_m$  lebih besar dari  $T_f$  bergeser dengan frekuensi karena adanya dispersi dielektrik. Penyebab dari anomali difusi *relaxor* dielektrik sering disebut “transisi fase

difusi feroelektrik” meskipun tidak ada transisi struktur yang benar-benar terjadi (Bokov & Ye 2006).



**Gambar 2.6** Perbedaan antara Feroelektrik dan Relaxor (Mathew, D. 2005)

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## **BAB III**

### **METODOLOGI PENELITIAN**

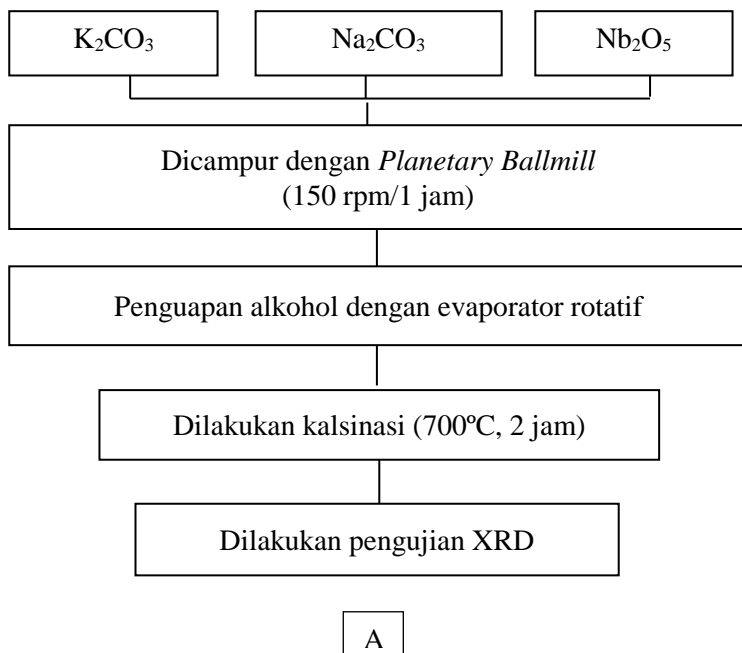
#### **3.1 Peralatan dan Bahan**

Peralatan yang digunakan pada penelitian ini terdiri dari *furnace* “carbolite” tipe RHF1400 (Barnstead), batu tahan api, *crucible*, plat alumina, timbangan digital *O’haus* PA214, *laboratory planetary mill* “Pulverisette 5” (Fritsch GmbH), spatula, gelas beker, cetakan pelet, hot plate, termometer, magnetic stirrer, mortar, pastel, *tissue*, *aluminium foil*, plastik, *pressure gauge*, evaporator rotatif “VV Micro” (Heidolph) dan *impedance analyzer* “Solatron”. Sedangkan bahan yang digunakan meliputi  $K_2CO_3$  (*merck*),  $Na_2CO_3$  (*merck*) dan  $Nb_2O_5$  (*merck*),  $Bi_5O(OH)_5(NO_3)_4$  (*merck*),  $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  (*merck*),  $C_6H_8O_7 \cdot H_2O$  (*merck*), Alkohol 96%, *aquades*, serta *silver conductive paste*.

#### **3.2 Prosedur Pembuatan**

##### **3.2.1 Sintesis $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ (KNN)**

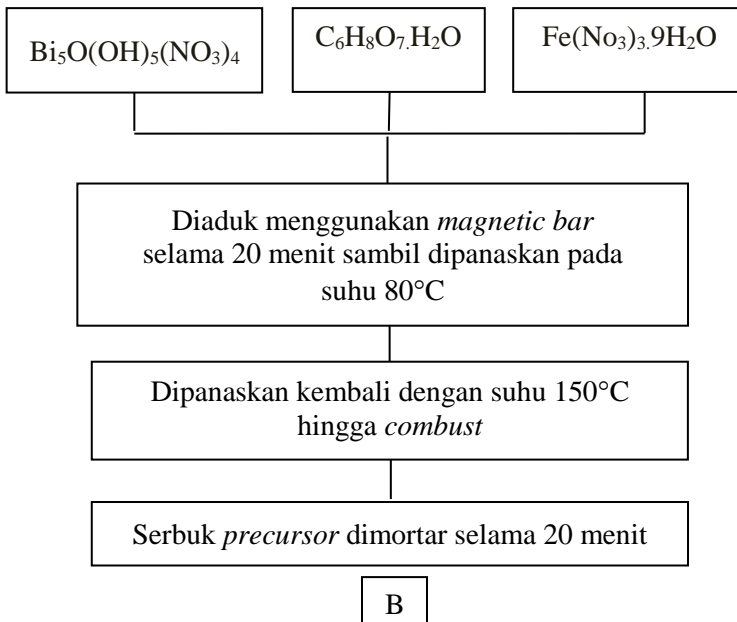
Sintesis KNN diawali dengan menimbang serbuk  $K_2CO_3$ ,  $Na_2CO_3$ , dan  $Nb_2O_5$  (*merck*) sesuai dengan takaran yang telah dihitung berdasarkan perhitungan stokiometri. Kemudian, dilakukan pencampuran ketiga serbuk tersebut dengan alkohol (96%) dalam *planetary milling* dan menggunakan *zirconia balls* selama 1 jam dengan kecepatan putaran 150 *rpm*. Campuran bahan-bahan tersebut dikeringkan menggunakan evaporator rotatif “VV Micro” (Heidolph) dengan tujuan agar alkohol yang tercampur pada bahan dapat menguap sehingga diperoleh serbuk KNN yang kering. Dilakukan kalsinasi pada suhu 700°C selama 2 jam dan dilakukan uji XRD untuk mengetahui karakterisasi struktur kristalnya. Berikut diagram alir proses sintesis KNN.



**Gambar 3.1** Skema sintesis KNN dengan metode *solid state*

### 3.2.2 Sintesis BiFeO<sub>3</sub> (BFO)

Material BiFeO<sub>3</sub> disintesis dengan menggunakan metode *auto-combustion* dengan bahan dasar serbuk Bi<sub>5</sub>O(OH)<sub>5</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub>.H<sub>2</sub>O dan Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>.9H<sub>2</sub>O (*merck*) dihitung berdasarkan perhitungan stokiometri. Kemudian semua serbuk dicampurkan dan diaduk dengan *magnetic stirer* sambil dipanaskan menggunakan *hot plate* hingga suhu 80°C selama 20 menit. Suhu ditambah menjadi sekitar 100-150°C hingga terjadi *combustion* dan terbentuk serbuk berwarna coklat kemerahan. Selanjutnya, *precursor* yang terbentuk dimortar selama 20 menit. Berikut diagram alir proses sintesis BFO.

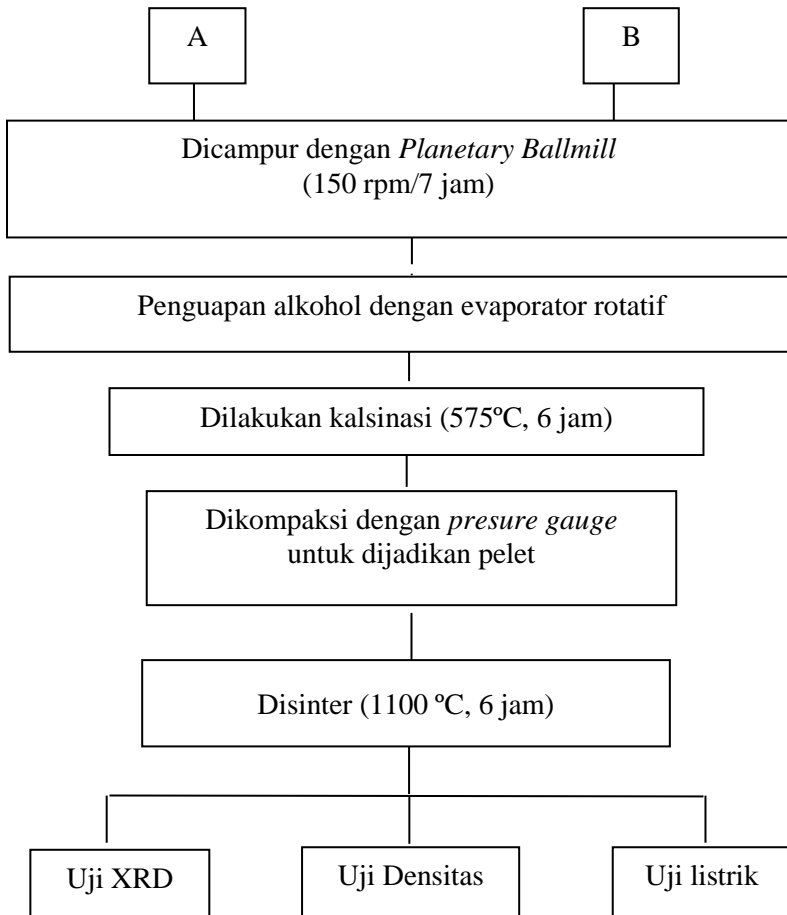


**Gambar 3.2** Skema sintesis BFO dengan metode *combustion-reaction*

### 3.2.3 Sintesis (1-x)KNN-xBFO

Serbuk hasil sintesis KNN dan BFO dicampurkan sesuai komposisi  $1-x(\text{K}_{0.51}\text{Na}_{0.54})\text{NbO}_3 - x\text{BiFeO}_3$  dimana  $\{x = 0,025; 0,05; 0,075\}$ . Dicampurkan ketiga serbuk tersebut dengan alkohol (96%) dalam *planetary milling* menggunakan *zirconia balls* selama 7 jam dengan kecepatan putaran 150 rpm. Campuran bahan-bahan tersebut dikeringkan menggunakan evaporator rotatif “VV Micro” (Heidolph) dengan tujuan agar alkohol yang tercampur dalam bahan datap menguap sehingga diperoleh serbuk KNNBFO yang kering. Dilakukan kasinasi pada suhu 575°C selama 2 jam dan dilakukan pengujian *X-Ray Diffraction* (XRD) untuk mengetahui fasa yang terbentuk. Serbuk KNNBFO dengan

fasa tunggal kemudian dibuat pelet dan disinter pada suhu 1100°C selama 5 jam untuk semua komposisi yang telah ditentukan. Pelet yang telah disinter disiapkan untuk pengujian densitas, dan uji listrik. Berikut diagram alir proses sintesis KNNBFO.



**Gambar 3.3** Skema Skema sintesis (1-x)KNN-xBFO dengan metode solid state



### 3.3 Karakterisasi Material

#### 3.3.1 Analisa struktur

Analisa struktur material dilakukan dengan dua cara yaitu analisa kualitatif dan analisa kuantitatif. Input data yang digunakan pada kedua analisa tersebut merupakan *output* data yang diperoleh dari pengujian *X-Ray Diffraction* (XRD). Hasil dari pengujian XRD berupa grafik antara intensitas dan sudut difraksi. Untuk dapat mengetahui fasa yang terbentuk pada material, dilakukan analisa kualitatif menggunakan *software Match!*. Analisa kuantitatif dilakukan menggunakan *software Rietica* dengan metode Dari data XRD juga dapat diperoleh parameter kisi bahan yang dianalisa melalui penghalusan pola terhitung dan terukur menggunakan program *Rietica* yang berbasis metode Rietveld.

#### 3.3.2 Pengukuran Densitas

Pengujian densitas pada sampel dilakukan setelah pengujian XRD. Pengujian densitas dilakukan dengan menggunakan metode Archimedes. Pertama, yang harus dilakukan yaitu sample dibentuk pellet disk. Pelet disk kemudian disinter. Setelah melalui proses sintering sample siap diuji densitasnya dengan menggunakan metode Archimedes. Langkah yang harus dilakukan yaitu memastikan bahwa permukaan sample rata. Sample yang rata kemudian ditimbang untuk mendapatkan massa kering dari sampel ( $m_{\text{kering}}$ ). Pada tahap berikutnya sampel yang sudah diketahui massa keringnya dicelupkan kedalam air sampai tidak muncul gelembung air yang masuk pada sampel. Sampel yang telah dibasahi kemudian ditimbang untuk mengetahui massa basah sampel ( $m_{\text{basah}}$ ). Sampel dimasukkan kedalam air sebagai massa dalam air ( $m_{\text{archimedes}}$ ). Besarnya densitas dapat dihitung dengan persamaan berikut ini :

$$\rho = \frac{m_k}{m_b - m_a} \times \rho_a \quad (3.1)$$

Dimana,  $m_k$  (massa kering),  $m_b$  (massa basah) dan  $m_a$  (massa Archimedes).

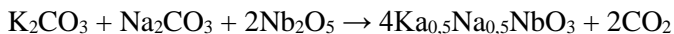
### **3.3.3 Pengujian Listrik**

Karakterisasi Listrik dilakukan dengan menggunakan *Impedance Analyzer* “Solartron”. Sebelum diuji terlebih dahulu sampel dilapisi dengan pasta perak dan dipanaskan pada suhu 350°C selama 20 menit di dalam oven. Kemudian dipasang kawat nikelin dengan cara dilapisi pasta perak dan dipanaskan kembali pada suhu 925°C dengan lama waktu penahanan selama 20 menit. Kawat nikelin berfungsi sebagai penghantar yang menghubungkan sampel dengan *Impekodance Analyzer* “Solartron”. Pengujian sifat listrik ini dilakukan pada suhu ruang, kemudian suhu 60°C hingga suhu 500°C dengan kenaikan 20°C.

## BAB IV ANALISA DATA DAN PEMBAHASAN

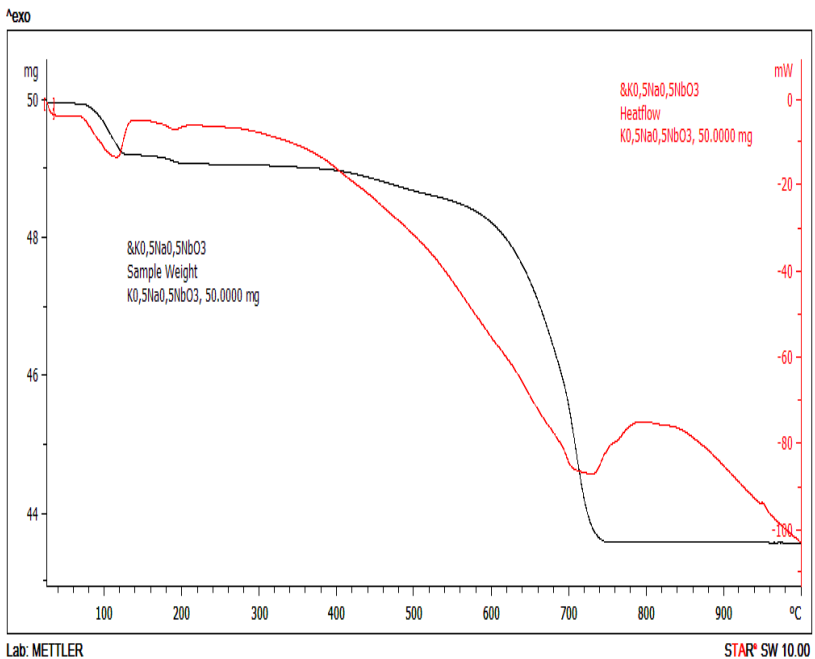
### 4.1 Hasil Sintesis KNN-BFO

Untuk memperoleh prekursor campuran  $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $BiFeO_3$  yang kemudian disebut KNN-BFO diperlukan suatu proses sintesis yang terdiri dari tiga tahapan. Proses sintesis yang pertama yaitu membuat KNN dengan menggunakan metode reaksi padat (*solid state*) dikarenakan bahan dasar yang digunakan berupa serbuk  $K_2CO_3$ ,  $Na_2CO_3$ , dan  $Nb_2O_5$  (*merck*) dengan komposisi yang sesuai perhitungan stoikiometri. Dicampurkan komposisi masing-masing bahan yang telah ditimbang sesuai perhitungan dan dicampurkan di dalam *Planetary Milling* menggunakan bola zirkonia dengan medium alkohol 96% selama satu jam dengan kecepatan 150 rpm. Hasil sintesis dengan reaksi padat ini masih menyisakan alkohol, sehingga dilakukan proses evaporasi menggunakan *evaporator rotatif* untuk menghilangkan sisa kandungan alkohol di dalam sampel KNN untuk mendapatkan ukuran butir yang sama. Tahap selanjutnya dilakukan kalsinasi pada suhu  $700^\circ C$  selama 2 jam untuk mendapatkan ukuran partikel yang optimum serta membentuk fasa kristal yang diinginkan. Pemilihan suhu kalsinasi tersebut berdasarkan penelitian Amalia bahwa suhu kalsinasi yang optimal pada rentang suhu  $650$ - $750^\circ C$  ditinjau dari hasil analisa termal (TGA-DTA) pada sampel KNN yang ditunjukkan pada (gambar 4.1). Dari grafik tersebut terlihat bahwa terjadi penurunan massa pada suhu sekitar  $100^\circ C$  yang disebabkan karena adanya penguapan air yang masih terkandung dalam campuran serbuk KNN akibat proses pengeringan yang belum sempurna. Terjadi pula penurunan massa pada rentang suhu antara  $650^\circ C$ - $750^\circ C$  yang dapat disebabkan karena adanya  $CO_2$  yang terlepas dari karbonatnya yang sesuai dengan persamaan pembentukan reaksi kimia KNN berikut :

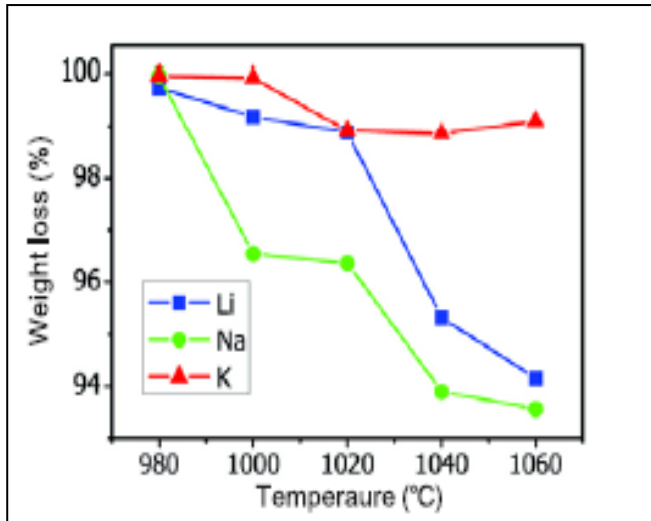


Penurunan massa tidak lagi terjadi pada suhu lebih dari 750 °C sehingga pada suhu ini diyakini merupakan suhu kalsinasi yang optimum untuk terjadinya reaksi pembentukan material KNN (Maghfiroh, A.M., 2015).

Unsur-unsur pembentuk KNN yakni K dan Na termasuk dalam golongan unsur alkali yang memiliki sifat volatilitas atau mudah menguap. Berdasarkan gambar 4.2 dapat terlihat perbedaan volatilitas pada unsur alkali terhadap fungsi temperatur dimana natrium memiliki volatilitas paling tinggi dibandingkan kedua unsur lainnya. Ditambahkan excess 2% mol K dan 8% mol Na pada sintesis KNN karena mengingat volatilitas dari unsur alkali pada temperatur diatas 980°C yang dikhawatirkan akan mengubah fasa tunggal akibat jumlah unsur K dan Na yang berkurang ketika proses sintering dilakukan (Wang, 2012).



**Gambar 4.1** Kurva hasil pengujian TGA-DTA 50 mg KNN



**Gambar 4.2** Grafik pengurangan massa terhadap temperatur beberapa unsur alkali (Wang, 2012)

Proses sintesis yang kedua yaitu pembuatan prekursor  $\text{BiFeO}_3$  dengan metode *auto combustion-reaction*. Ada beberapa metode yang dapat dilakukan dalam pembuatan BFO seperti *solid state*, *sol-gel*, *precipitation/coprecipitation*, sintesis hidrotermal, *high energy ballmilling*, *microwave* dan Pechini (Tripathy, S.N., et al, 2013). Metode *auto combustion-reaction* ini digunakan karena berdasarkan beberapa penelitian yang telah dilakukan, metode ini memiliki beberapa kelebihan yaitu dapat membentuk *single phase*, waktu preparasi singkat, mudah terbentuk secara menyeluruh, temperatur yang dibutuhkan rendah dan kemampuan untuk mensintesis nanopartikel (K.C. Patil, et al, 2008). Bahan yang digunakan terdiri dari metal nitrat  $\text{Bi}_5\text{O}(\text{OH})_5(\text{NO}_3)_4$  dan  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  serta asam sitrat  $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O}$  (*merck*) yang dihitung berdasarkan stokiometri. Campuran bahan-bahan tersebut dipanaskan dan diaduk dengan stirer dan dipanaskan menggunakan hot plate pada suhu  $80^\circ\text{C}$  selama 20 menit kemudian dipanaskan sampai mengalami pembakaran pada suhu

sekitar 100 °C – 150°C dan didapatkan prekursor berwarna coklat kemerahan. Untuk mendapatkan ukuran butir yang lebih homogen maka dihaluskan dengan mortar dan pastel selama 20 menit.

Prekursor KNN dan BFO keduanya dicampurkan dengan rasio 1-xKNNxBFO dengan variasi  $\{x = 0,025; 0,05; 0,075\}$  dengan metode solid state menggunakan *Planetary Milling* menggunakan bola zirkonia dengan medium alkohol 96% selama satu jam dengan kecepatan 150 rpm. Kemudian untuk menghomogenkan ukuran butir dan menghilangkan sisa alkohol yang masih tersisa pada campuran KNN-BFO maka dievapor menggunakan *evaporator rotatif*. Prekursor KNN-BFO dikalsinasi dengan suhu 575 selama 2 jam. Penentuan suhu kalsinasi ini mengacu pada suhu kalsinasi BFO dikarenakan untuk menjaga komposisi BFO dalam jumlah yang kecil dibandingkan dengan KNN. Prekursor hasil kalsinasi ditimbang masing-masing 0,7 gram pada setiap variasi komposisi untuk dibentuk pelet pada tekanan 50 MPa. Pelet disinter pada suhu 1100°C dengan penahanan selama enam jam berdasarkan penelitian yang dilakukan oleh Zuo R (2007) bahwa suhu sintering maksimum pada 1100 °C yang mempengaruhi nilai densitas yang didapatkan (gambar 4.5).

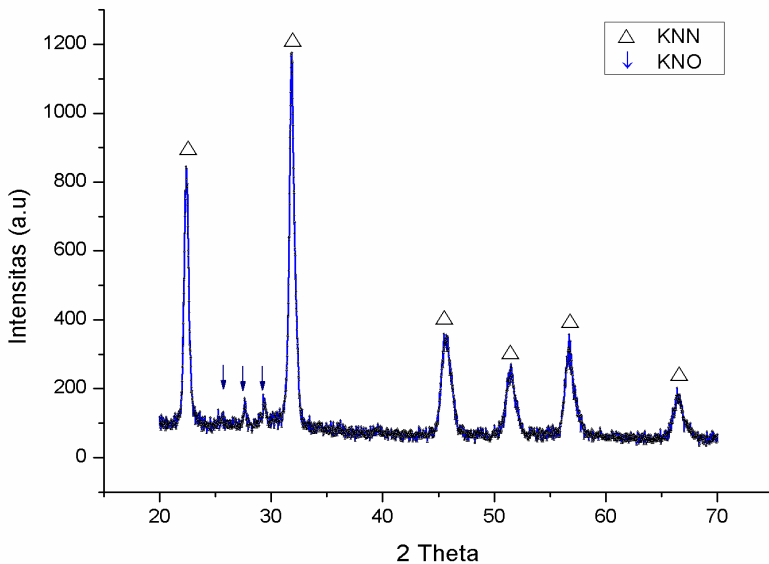
Pelet yang telah disinter kemudian dilakukan pengujian listrik dan densitasnya. Untuk uji densitas, sampel yang telah disinter bisa langsung digunakan untuk proses pengujian. Namun untuk pengujian listrik, sampel yang telah disinter perlu dilakukan preparasi tambahan yaitu melapisi kedua sisi pelet menggunakan pasta perak yang berfungsi sebagai elektroda pada saat pengujian listrik. Untuk mengeringkan pasta perak di kedua sisi, maka pelet dipanaskan menggunakan oven pada suhu 350°C selama 20 menit pada setiap sisi secara bergantian. Kedua sisi yang telah dilapisi pasta perak kemudian dipasang kawat sebagai penghubung antara sampel yang berada dalam *furnace* ke *solatron analyzier*. Sampel yang telah terhubung dengan kawat dipanaskan terlebih dahulu dengan suhu 925°C dengan

penahanan waktu selama 20 menit untuk menghilangkan toluena yang tercampur di dalam pasta perak. Pemilihan suhu 925 °C ini dikarenakan titik didih toluena adalah 950°C. Setelah pemanasan ini barulah dilakukan pengujian listrik pada sampel KNNBFO.

## 4.2 Analisis Hasil XRD

Prekursor hasil sintesis KNN, BFO dan KNN-BFO ketiganya dilakukan pengujian XRD untuk mengetahui struktur kristal yang terbentuk. Dilakukan dua analisa secara kualitatif dan kuantitatif, dimana analisa kualitatif menggunakan *software Match!* untuk mengetahui fasa yang terbentuk pada sampel. Analisa kuantitatif menggunakan metode *rietveld refinement* yang merupakan metode pencocokan pola difraksi terhitung (model) dengan pola difraksi terukur yang didasarkan pada data kristalografi yang sesuai yang berasal dari *database ICSD* (Pratapa, 2011). Selain ICSD bisa juga digunakan *database* lain yang berasal dari *Chritalography on Database* (COD) dengan data yang berekstensi cif (\*.cif). Metode ini digunakan untuk mengetahui beberapa parameter secara terhitung seperti parameter kisi dan letak atom-atom penyusunnya menggunakan *software Rietica*.

Hasil XRD prekursor KNN pada Gambar 4.3 terlihat puncak-puncak yang terbentuk antara sudut pendek 2 theta 20–70° dengan intensitas puncak yang beragam. Dilakukan analisis kualitatif menggunakan *software Match!* untuk mengetahui fasa yang terbentuk dan didapatkan bahwa puncak-puncak yang terbentuk mengidentifikasi adanya fasa KNN dan ditemukan adanya fasa lain yaitu  $K_5Nb_{10}O_{30}$  (KNO) (Lopez-Juarez et al, 2011). Adanya fasa kedua KNO diduga muncul pada saat proses sintering beberapa unsur alkali menguap akibat volatilitasnya dan bereaksi dengan oksigen membentuk KNO. KNN dengan struktur perovskite orthorombik  $ABO_3$  juga berhasil terbentuk pada suhu kalsinasi 700°C dengan situs A diisi oleh atom K, Na dan situs B diisi oleh atom Nb.



**Gambar 4.3** Hasil pola difraksi KNN kalsinasi 700°C 2 jam

Analisa kuantitatif dilakukan dengan membandingkan data hasil XRD dan model KNN yang didekati dengan struktur orthorombik (Amm2) yang berasal dari data COD dimana posisi atom K berada pada ( $x = y = 0$ ;  $z = 0,0453$ ), atom Na ( $x = y = 0$ ;  $z = 0,453$ ), atom Nb ( $x = 0,5$ ;  $y = 0$ ;  $z = 0,5251$ ) dan atom O ( $x = y = 0$ ;  $z = 0,4727$ ) dengan parameter kisi  $a = 3,9443 \text{ \AA}$ ,  $b = 5,6425 \text{ \AA}$  dan  $c = 5,6763 \text{ \AA}$ . Data hasil refinement dapat dilihat pada tabel 4.1 dimana jika dilihat dari nilai parameter kisinya didapatkan bahwa sampel KNN yang terbentuk memiliki struktur ortorombik dimana nilai  $a \neq b \neq c$ . Nilai GOF yang mendekati 4% mengindikasikan bahwa antara data terukur (model) dan data terhitung memiliki kecocokan yang baik (Kisi, 1994).

Hasil XRD prekursor KNN-BFO pada gambar 4.4 terlihat beberapa puncak yang terbentuk pada sudut pendek 2 theta  $20^\circ - 70^\circ$  dengan intensitas puncak yang beragam pada variasi 1-xKNN-xBFO dengan  $\{x = 0,025; 0,05; 0,075\}$ . Perbandingan

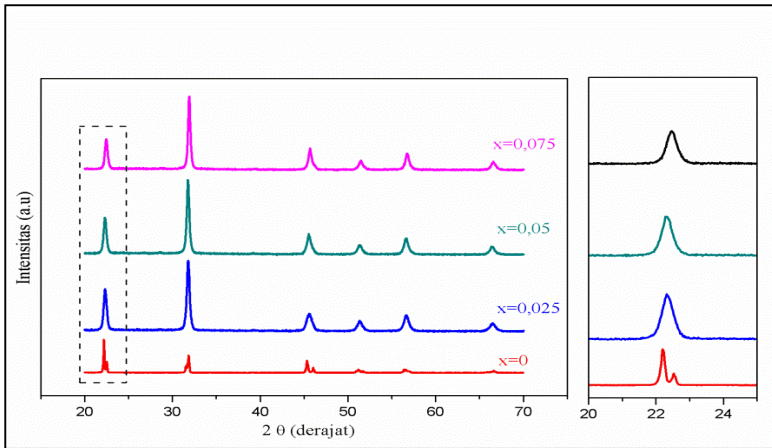


**Tabel 4.1** Hasil analisa kuantitatif pada rietica sampel KNN

KNN Kalsinasi 700°C 2 jam	
Rp	15,08
Rwp	19,56
R-Bragg	10,31
GOF	4,05
a	$3,95523 \pm 0,00148$
b	$5,63766 \pm 0,00226$
c	$5,67845 \pm 0,00215$

komposisi ini dipilih karena berdasarkan penelitian-penelitian sebelumnya (Chen et al, 2013, Cho et al, 2012, Lee et al 2012 dan hao et al, 2012) ditemukan bahwa struktur perovskite fasa tunggal untuk sistem berbasis KNN dicapai bila komponen KNN lebih banyak daripada komponen lain. Dilakukan analisis kualitatif menggunakan *software Match!* untuk mengetahui fasa yang terbentuk dan didapatkan bahwa puncak-puncak yang terbentuk mengidentifikasi adanya fasa KNN-BFO tanpa diikuti dengan adanya fasa lain yang artinya prekursor yang telah didapatkan berhasil terbentuk *single phase*. KNN-BFO dengan struktur tetragonal  $ABO_3$  juga berhasil terbentuk pada suhu kalsinasi 575°C selama 2 jam dimana situs A diisi oleh atom K, Na dan Bi serta situs B diisi oleh atom Nb dan Fe.

Dari gambar 4.4 terlihat bahwa terjadi perubahan struktur kristal pada KNN murni yakni orthorombik menjadi tetragonal akibat adanya pendopongan BFO. *Splitting peak* yang terlihat pada sudut  $2\theta$  sekitar  $22^\circ$  dan  $45^\circ$  pada sampel KNN berubah menjadi *single peak* ketika diberi penambahan BFO yang menandakan adanya perubahan struktur kristal tersebut. Adanya pergeseran posisi puncak pada penambahan BFO dimana semakin besar doping BFO yang diberikan maka posisi puncak semakin bergeser ke kanan yang artinya parameter kisi dari sampel tersebut semakin kecil. Hal ini dikonfirmasi pada analisis kuantitatif dengan metode *rietveld* pada tabel 4.2.



**Gambar 4.4** Pola difraksi pada material 1-x(KNN)-xBFO

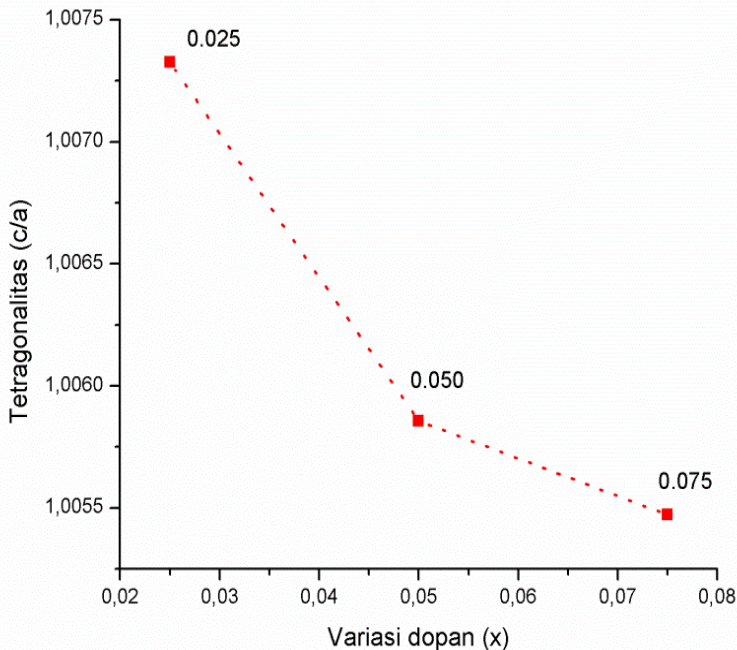
Analisa kuantitatif juga dilakukan dengan membandingkan data hasil XRD dan model KNN-BFO yang didekati dengan struktur tetragonal ( $P4mm$ ) yang berasal dari data COD dimana posisi atom K berada pada ( $x = y = z = 0$ ), atom Na ( $x = y = z = 0$ ), atom Nb ( $x = y = 0.5$  ;  $z = 0.492$ ), atom O ( $x = y = 0.5$  ;  $z = 0.638$ ), atom O ( $x = 0.5$  ;  $y = 0$  ;  $z = 0.539$ ), atom Bi ( $x = y = z = 0$ ), Fe ( $x = y = 0.5$  ;  $z = 0.492$ ) dan atom O ( $x = y = 0.5$  ;  $z = 0.638$ ), dengan parameter kisi  $a = b = 3.9509 \text{ \AA}$  dan  $c = 4.0085 \text{ \AA}$ .

Dari hasil *refinement* didapatkan nilai dari parameter kecocokan, parameter kisi dan struktur yang terbentuk. Pada KNN murni didapatkan struktur orthorombik dengan parameter kisi  $a \neq b \neq c$  dimana nilai  $a > b > c$ . Pendopongan BFO pada semua komposisi mengakibatkan adanya perubahan struktur dari orthorombik ke tetragonal. Hasil ini mengkonfirmasi hasil kualitatif yang didapatkan dari analisis pola difraksi pada *software match!*. Pada semua komposisi dopan didapatkan stru<sub>29</sub> tetragonal dengan parameter kisi  $a = b \neq c$  dengan nilai  $c > a$ .

**Tabel 4.2** Hasil analisa kuantitatif pada Rietica sampel 1-xKNN-xBFO

Variasi (x)	Parameter Kecocokan	Parameter Kisi ( $\text{\AA}$ )	Struktur
0.000	Rp = 15.06 Rwp = 19.56 GoF = 4.05 R-Bragg = 10.3	a=3.95523 $\pm$ 0.00148 b=5.63766 $\pm$ 0.00226 c=5.67845 $\pm$ 0.00215	Orthorombik
0.025	Rp = 8.878 Rwp = 7.168 GoF = 1.949 R-Bragg = 5.36	a=b=3.98321 $\pm$ 0.000942 c=4.012385 $\pm$ 0.000852	Tetragonal
0.050	Rp = 6.649 Rwp = 6.257 GoF = 1.389 R-Bragg = 4.03	a=b=3.97353 $\pm$ 0.00028 c=3.99679 $\pm$ 0.00041	Tetragonal
0.075	Rp = 7.937 Rwp = 8.128 GoF = 1.987 R-Bragg = 4.90	a=b=3.97813 $\pm$ 0.00048 c=3.99989 $\pm$ 0.00047	Tetragonal

Untuk mengetahui pengaruh komposisi dopan terhadap tetragonalitas dilakukan perhitungan untuk mendapatkan nilai tetragonalitasnya yang kemudian di plot pada grafik seperti pada gambar 4.5. Dari grafik tersebut didapatkan bahwa nilai tetragonalitasnya semakin menurun seiring meningkatnya komposisi dopan BFO. Pada komposisi dopan BFO  $x = 0,025$  nilai tetragonalitasnya sangat tinggi dibandingkan komposisi lainnya yaitu sekitar 1,0073 yang artinya bahwa pola susunan struktur tetragonalnya semakin ramping dimana nilai parameter kisi c lebih besar dari a.



**Gambar 4.5** Grafik hubungan tetragonalitas terhadap komposisi BFO p material (1-x)KNN-xBFO 31

### 4.3 Analisis Uji Densitas

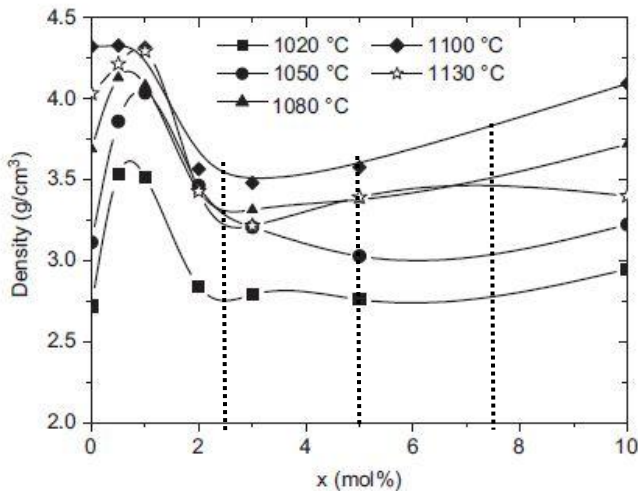
Pengukuran densitas dilakukan dengan menggunakan metode archimedes untuk semua sampel. Pelet yang telah disinter pada suhu 1100°C selama 6 jam dipastikan permukaannya rata, hal ini karena pengujian densitas bergantung pada kerapatan sampel yang akan diuji. Dilakukan pengukuran massa kering dan massa basah pada semua sampel, untuk massa basah semua sampel dibasahi dengan air secara merata kemudian ditimbang. Setelah mendapatkan massa basah dan massa kering kemudian sampel dimasukkan kedalam air sampai gelembung-gelembungnya tidak ada, hal ini karena ketika gelembung-gelembung udara suda tidak ada menandakan bahwa poros-poros pada sampel telah terisi dengan air dan didapatkan massa archimedesnya. Setelah massa kering, massa basah dan

massa archimedes telah didapatkan maka dilakukan perhitungan berdasarkan persamaan 3.1 untuk mendapatkan nilai densitas secara pengukuran. Tabel 4.3 menunjukkan densitas pengukuran archimedes, densitas teoritis yang didapatkan dari perhitungan kristalografi output *retieca* serta densitas relatif dari semua komposisi sampel pelet yang telah melalui proses sintering pada suhu 1100°C selama enam jam. Dari tabel diketahui bahwa nilai dari densitas teoritis dan densitas perhitungan dengan hukum archimedes memiliki nilai yang berbeda, hal ini dapat disebabkan karena adanya faktor eror pada saat pengujian seperti *human eror* dan faktor lingkungan. Densitas secara teoritis menunjukkan adanya peningkatan nilai densitas seiring bertambahnya dopan BFO. Hasil ini mendukung penelitian yang dilakukan oleh Zuo R (2007) yang dapat dilihat pada gambar 4.6.

Densitas relatif terbesar bernilai 89,386% pada penambahan BFO sebanyak 5% yang artinya pada komposisi tersebut BFO dapat berperan baik pada saat proses *shrinkage* KNN. Komposisi KNN murni sulit untuk mendapatkan nilai densitas yang tinggi karena sifat dari unsur sodium dan potasium yang mudah menguap serta pertumbuhan butir pada suhu tinggi. Butir yang cenderung kasar mengakibatkan kerapatannya berkurang dan nilai densitasnya semakin kecil.

**Tabel 4.3** Hasil Uji Densitas pada material 1-x(KNN)-xBFO

Komposisi x	Densitas		
	Archimedes (g/cc)	Teoritik (g/cc) Kristalografi output rietica	Relatif (%)
0	3,7801	4,4804	84,3703
0,025	3,7601	4,5765	82,1603
0,05	4,1952	4,6934	89,3860
0,075	4,1884	4,7469	87,3140



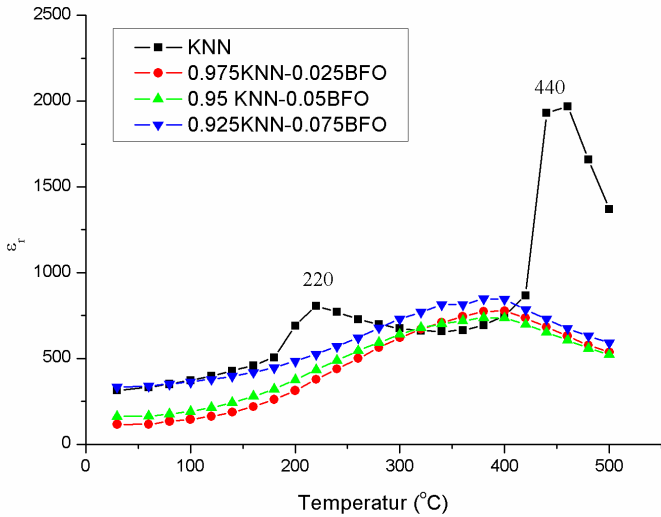
**Gambar 4.6** Pengaruh komposisi dan suhu sintering terhadap nilai densitas (Zuo. R, 2007)

#### 4.4 Karakterisasi Sifat Listrik

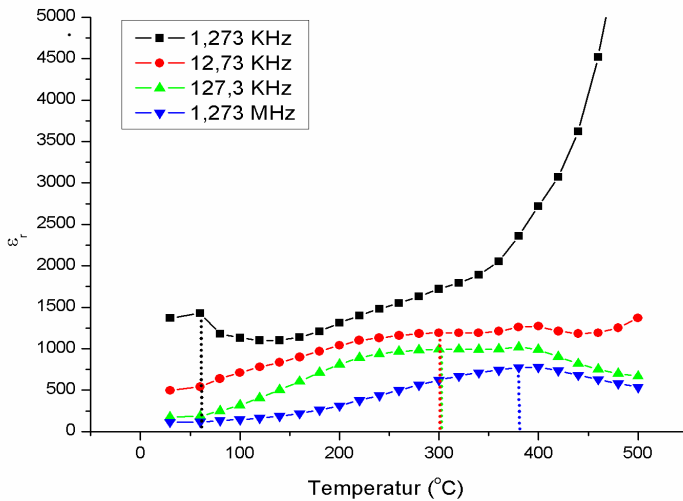
Dilakukan karakterisasi sifat listrik pada sampel KNNBFO pada semua komposisi untuk mengetahui keterkaitan permivitas relatif terhadap temperatur setiap komposisi dan frekuensi tertentu serta untuk mengetahui efek relaxor pada material KNNBFO. Keterkaitan permivitas relatif terhadap temperatur pada setiap komposisi  $x = 0,025$ ;  $0,05$  dan  $0,075$  ditunjukkan pada gambar 4.7. Pada material KNN murni ditunjukkan bahwa terdapat dua temperatur transisi fasa dari struktur orthorombik ke tetragonal pada suhu sekitar  $220^{\circ}\text{C}$  dan perubahan struktur tetragonal ke kubik ( $T_c$ ) pada suhu sekitar  $440^{\circ}\text{C}$  hasil ini mendekati hasil penelitian yang dilakukan Zuo. R, 2007. Adanya penambahan BFO pada KNN menyebabkan kedua temperatur transisi fasa tersebut bergeser menuju temperatur yang lebih rendah (Zuo. R, 2007). Bahkan penambahan BFO dengan komposisi 2,5%, 5% dan 7,5% menyebabkan transisi fasa orthorombik ke tetragonal tidak lagi terlihat dan konstanta dielektriknya mengalami penurunan serta puncak disekitar  $T_c$  mengalami pelebaran. Gejala yang ditunjukkan tersebut

merupakan gejala *relaxors*. *Relaxors* merupakan bagian dari feroelektrik yang memiliki struktur dan sifat khas. Puncak yang lebar dan luas berkaitan dengan dinamika pembekuan dipol yang bergantung pada permitivitas relatif dan temperatur. Pada *relaxor* sebenarnya tidak ada transisi struktur yang benar-benar terjadi.

Kebergantungan permitivitas relatif terhadap temperatur pada frekuensi tertentu disetiap komposisi  $\{x=0,025; 0,05; 0,075\}$  ditunjukkan pada gambar 4.8, 4.9 dan 4.10 secara berurutan. Pada ketiga gambar tersebut dapat diamati temperatur maksimum ( $T_m$ ) dan nilai permitivitas relatif pada frekuensi tertentu yang disajikan pada tabel 4.4. Pada material *relaxor* ini nilai permitivitas relatif menurun seiring meningkatnya frekuensi, hal ini sesuai dengan teori bahwa permitivitas relatif berbanding terbalik terhadap frekuensi. Permitivitas relatif bernilai konstan pada setiap penambahan komposisi dopan BFO terkecuali pada frekuensi 1,273 KHz. Pada frekuensi tersebut nilai permitivitas relatif semakin meningkat seiring bertambahnya komposisi dopan BFO 2,5%, 5% dan 7,5% yaitu masing-masing sebesar 1400, 2100 dan 6500. Sedangkan nilai  $T_m$  cenderung tetap atau meningkat seiring bertambahnya frekuensi dan cenderung tetap atau menurun terhadap penambahan komposisi dopan BFO. Namun pada frekuensi 1,273KHz penambahan komposisi dopan BFO tidak mempengaruhi nilai  $T_m$  atau dalam kata lain nilai  $T_m$  bernilai konstan. Dalam hal ini, frekuensi mempengaruhi nilai permitivitas relatif dan  $T_m$ , dimana pada frekuensi rendah yaitu 1,273KHz nilai permitivitas relatifnya meningkat dan  $T_m$  bernilai konstan terhadap setiap penambahan komposisi dopan BFO. Sedangkan pada frekuensi 12,73 KHz, 127,3KHz dan 1,273MHz berlaku sebaliknya yaitu permitivitas relatifnya bernilai konstan dan nilai  $T_m$  nya cenderung menurun terhadap setiap penambahan komposisi dopan BFO. Hasil ini mendukung penelitian Miah, M.J. 2016 bahwa permitivitas relatif dipengaruhi oleh frekuensi.

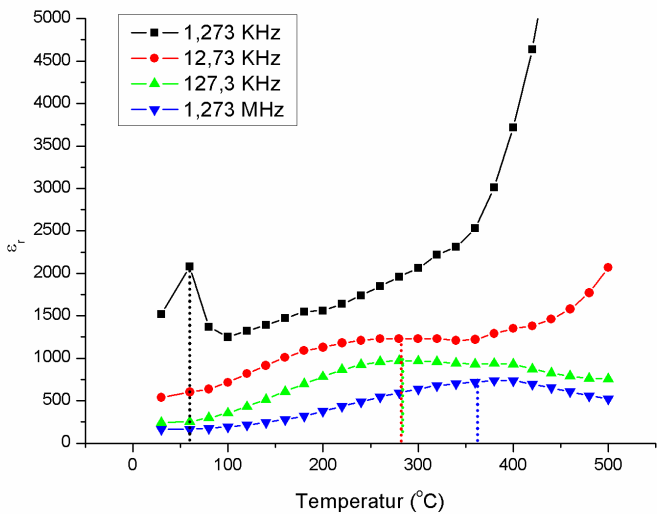


**Gambar 4.7** Grafik hubungan permivitas relatif terhadap temperatur pada frekuensi 1,273 MHz material (1-x) KNN

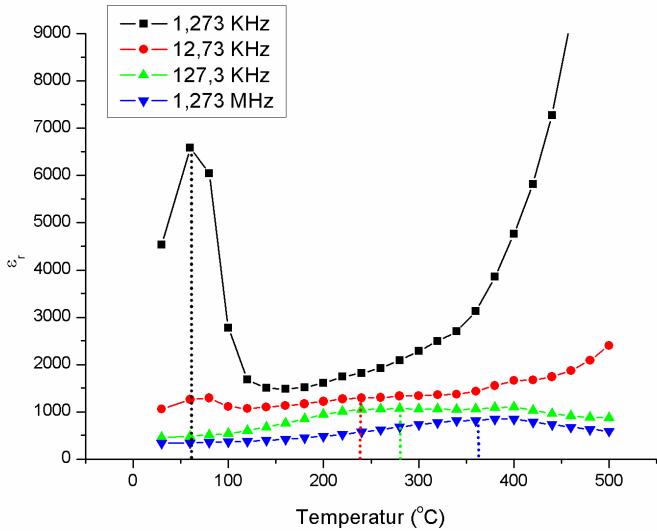


**Gambar 4.8** Grafik hubungan permivitas relatif terhadap temperatur pada material (1-x)KNN-xBFO dengan x=0,025





**Gambar 4.9** Grafik hubungan permivitas relatif terhadap temperatur pada material  $(1-x)\text{KNN}-x\text{BFO}$  dengan  $x=0,05$



**Gambar 4.10** Grafik hubungan permivitas relatif terhadap temperatur pada material  $(1-x)\text{KNN}-x\text{BFO}$  dengan  $x=0,075$

**Tabel 4.4** Nilai Permittivitas relatif dan  $T_m$  Pada sampel (1-x)KNN-xBFO

Frekuensi	Komposisi x					
	0,025		0,05		0,075	
	$\epsilon_r$	$T_m(^{\circ}\text{C})$	$\epsilon_r$	$T_m(^{\circ}\text{C})$	$\epsilon_r$	$T_m(^{\circ}\text{C})$
1,273KHz	1400	60	2100	60	6500	60
12,73KHz	1200	300	1200	280	1200	240
127,3KHz	1000	300	1000	280	1000	280
1,273MHz	750	380	750	360	750	360

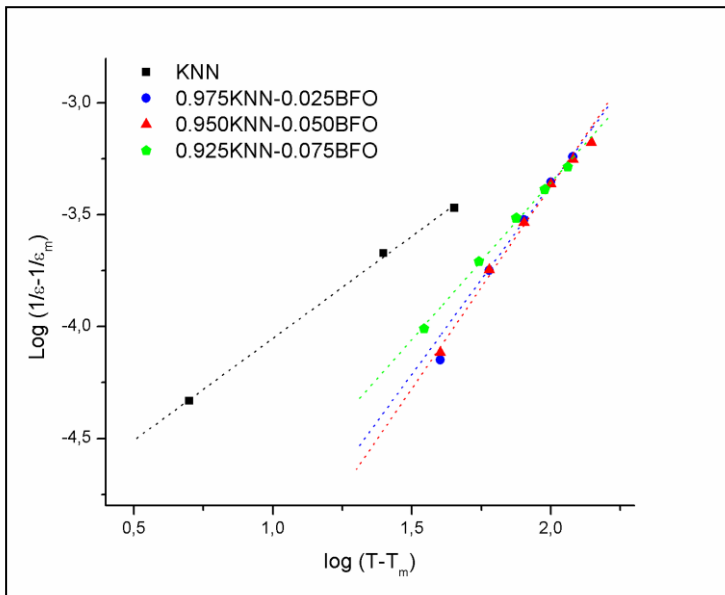
Perilaku *relaxor* dan feroelektrik pada material KNN dan pendopingan KNN telah diditeliti lebih lanjut dan dimodifikasi menggunakan hukum *Curie-Weiss* sebagai berikut :

$$\frac{1}{\epsilon} - \frac{1}{\epsilon_m} = \frac{(T-T_m)^\gamma}{C_{cw}} \quad 4.1$$

Dimana  $\epsilon$  dan  $\epsilon_m$  merupakan permittivitas relatif,  $T$  dan  $T_m$  adalah temperatur ketika  $\gamma$  dan  $C_{cw}$  adalah konstanta. Nilai  $\gamma$  mendekati 1 untuk normal feroelektrik dan bernilai 2 untuk *relaxor* ideal. Plot dari  $\log \left( \frac{1}{\epsilon} - \frac{1}{\epsilon_m} \right)$  terhadap fungsi  $\log (T - T_m)$  pada frekuensi 1,273 MHz untuk material keramik (1-x)KNN-xBFO yang ditunjukkan pada gambar 4.11. Pada gambar tersebut kemiringan kurva yang fit menentukan nilai  $\gamma$  yang ditunjukkan pada tabel 4.5. Pada tabel terlihat bahwa nilai  $\gamma$  pada material KNN bernilai 0,911 dengan nilai regresi sebesar 0,992 yang artinya material KNN murni berperilaku sebagai feroelektrik. Hal ini sesuai dengan penelitian-penelitian sebelumnya yang pernah dilakukan oleh Zuo. R, (2006). Adanya penambahan BFO dengan komposisi 2,5% memiliki nilai  $\gamma$  sebesar 1.696 dengan nilai regresi sebesar 0,998 yang artinya nilai  $\gamma$  mendekati 2 yang menunjukkan perilaku *relaxor*. Penambahan komposisi doping 5% memiliki nilai  $\gamma$  sebesar 1,812 dengan nilai regresi sebesar 0,995 yang artinya nilai  $\gamma$  juga mendekati 2 yang menunjukkan perilaku *relaxor*. Dan untuk Penambahan komposisi doping 7,5% memiliki nilai  $\gamma$  sebesar 1,403 dengan nilai regresi sebesar 0,997 dimana nilai  $\gamma$  lebih kecil jika dibandingkan kedua komposisi lainnya.

**Tabel 4.5** Nilai  $\gamma$  dan  $R^2$  pada material (1-x)KNN-xBFO

Komposisi x	$\gamma$	$R^2$
0	0,911	0,992
0,025	1,696	0,998
0,050	1,812	0,995
0,075	1,403	0,997



**Gambar 4.11** Grafik hubungan *relaxor* feroelektrik pada material (1-x)KNN-xBFO

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## **BAB V**

### **KESIMPULAN DAN SARAN**

#### **5.1 Kesimpulan**

Kesimpulan yang diperoleh dari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Adanya penambahan BFO pada KNN mengakibatkan adanya perubahan struktur perovskite dari orthorombik ke tetragonal dan nilai densitas teoritis KNNnya menjadi semakin tinggi serta didapatkan nilai densitas relatif terbesarnya pada komposisi  $x=0,05$  yaitu 89,386%.
2. Penambahan komposisi dopan BFO memberikan pergeseran sifat feroelektrik normal yang dimiliki KNN menjadi *relaxor* dengan nilai  $\gamma > 1$  dan dipatkan nilai  $\gamma$  terbaik pada komposisi  $x = 0,05$  yaitu 1,812

#### **5.2 Saran**

Material  $(1-x)\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3-x\text{BiFeO}_3$  telah dipelajari proses sintesis maupun karakterisasinya. Dari hasil penelitian ini perlu dilakukan penelitian lebih lanjut baik dari segi variasi komposisi  $x$  dari nilai yang lebih kecil maupun yang lebih besar supaya dapat dianalisa dengan jelas pengaruh dari pendopingan tersebut. Analisa sifat kelistrikan lainnya juga perlu dilakukan untuk memperkuat karakteristik listrik yang dimiliki oleh material KNNBFO sehingga lebih berguna dan dapat diaplikasikan pada kehidupan sehari-hari.

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## DAFTAR PUSTAKA

- Ahtee, M et al. 1976. *Lattice Parameters and Tilted Octahedra in Sodium-Potassium Niobate Solid Solition*, Acta Crystallographica, Section A : Foundations of Crystallography, 32 434-4
- Barsoum, M., Barsoum, M.W., 2002. *Fundamentals of Ceramics*. CRC Press.
- Bellaki, dkk. 2009. *Synthesis and Magnetic Properties of BiFeO<sub>3</sub> and Bi<sub>0.98</sub>Y<sub>0.02</sub>FeO<sub>3</sub>*. Material Chemistry and Physics 16. 599-602.
- B. Malik, J. Bernard, J. Holc, D. Jenko, M. Kosec, Alkaline-earth doping in (K, Na)NbO<sub>3</sub> based piezoceramics, Journal of the European Ceramic Society 25 (2005) 2707–2711.
- Bokov, A. A., 2007. *Recent Ptogress in Relaxor Feroelectrics with Perovskite Structure. J. Of Material Science* 31-52.
- Callister, William. D. 2008. *Materials science and engineering 3<sup>rd</sup> edition: an introduction/* William D. Callister. John Wiley & Sons, Inc. United State.
- Chen, T., Wang, H., Zhang, T., Wang, G., Zhou, J., Zhang, J., Liu, Y., 2013. *Piezoelectric behavior of (1-x)K<sub>0.50</sub>Na<sub>0.50</sub>NbO<sub>3</sub>-xBa<sub>0.80</sub>Ca<sub>0.20</sub>ZrO<sub>3</sub> lead-free ceramics*. Ceram. Int. 39, 6619–6622. doi:10.1016/j.ceramint.2013.01.098
- Cheo, C.W., Cha, M.R., Jang, J.Y., Lee, S.H., Kim, D.J., Park, S., et al., 2012. *Ferroelectric relaxor properties of (1-x)K<sub>0.5</sub>Na<sub>0.5</sub>NbO<sub>3</sub>-xBa<sub>0.5</sub>Ca<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> ceramics*. Current Applied Physics, 12, 1266–1271.
- Delgado, M., 2005. *Phase Transitions in Relaxor Ferroelectrics* Hill, Nicola. 2000. J. Phys. Chem. B104, 6694.
- [http://groups.ist.utl.pt/rschwarz/rschwarzgroup\\_files/Ferroelectric\\_s\\_files/NOLEAD3.htm](http://groups.ist.utl.pt/rschwarz/rschwarzgroup_files/Ferroelectric_s_files/NOLEAD3.htm)
- Kisi, E. H. 1994, ‘*Rietveld Analysis of Powder Diffraction Pattern*’, Materials Forum, Vol. 18, pp. 135-153.

- Kumar, P., Pattanaik, M., Sonia, 2013. Synthesis and characterizations of KNN ferroelectric ceramics near 50/50 MPB. *Ceramics International*, 39(1), 65–69.
- Lakshmi, B. Dhana, O. F. Caltun, I. Dumitru, K. Pratap, B. Parvatheeswara Rao, and P. S. V. Subba Rao. 2015. “Bi<sub>0.95</sub>Mn<sub>0.05</sub>FeO<sub>3</sub> - Ni<sub>0.5</sub>Zn<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> Nanocomposites with Multiferroic Properties.” *Materials Today: Proceedings*, The Selected Papers of 10th International Conference on Physics of Advanced Materials, ICPAM-10, 2 (6): 3806–12. doi:10.1016/j.matpr.2015.08.010.
- Maghfiroh, A.M., 2015. Sintesis dan Karakterisasi Material Feroelektrik Bebas Timbal 0,8(K<sub>0,5</sub>Na<sub>0,5</sub>NbO<sub>3</sub>)-0,2(Ba<sub>0,8</sub>Ca<sub>0,2</sub>Zr<sub>0,5</sub>TiO<sub>3</sub>) dengan Metode Gabungan Reaksi Padat dan Kopresipitasi. Tugas Akhir Jurusan Fisika Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- Ma, J., Z. Shi, and C.-W. Nan. 2007. “Magnetoelectric Properties of Composites of Single Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> Rods and Terfenol-D/Epoxy with a Single-Period of 1-3-Type Structure.” *Advanced Materials* 19 (18): 2571–73. doi:10.1002/adma.200700330
- M, Deepam., et. al., 2008. *BiFeO<sub>3</sub> ceramics synthesize by mechanical activation assisted versus conventional solid-state reaction process : A comparative study.*
- Moulson, A.J dan Herbert, J.M., 2003. *Electroceramics: Material, Properties and Applications Second Edition.* England: John Wiley and Sons.
- N, Tien Thao., et.al., 2007. *Effect of alkali additives over nanocrystalline Co-Cu-based perovskite as catalysts for higher alcohol synthesis.*
- Pratapa, S., 2011. Analisis Data Difraksi menggunakan Metode Rietveld. Fisika FMIPA ITS, Surabaya.
- R.E Jaeger, L. Egerton, Hot pressing of potassium–sodium niobates, *Journal of the American Ceramic Society* 45 (1962) 209–213



- Ren, X.B., Liu, W.F., 2009. *Large Piezoelectric Effect in Pb-Free Ceramics*. Physics, 103.
- Rigoberto López-Juárez. *Lead-Free Ferroelectric Ceramics with Perovskite Structure*. [www.intechopen.com](http://www.intechopen.com). Universidad Autónoma Metropolitana-Iztapalapa. México.
- Sosnoswoka, I.; Peterlin-Neumaier, T.; Stechele, E. *J.Phys. C: Condens. Matter* 1982, 15, 4835
- Suasmoro, S. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko dan U.M. Dani, 2000. The characterization of mixed titanate  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$  phase formation from oxalate coprecipitated precursor. *Journal of European Ceramic Society* 20 309-314.W.
- Kleemann, 2006. *Europhys. Lett.* 57 14
- S. Z. Ahn., 1987. *J.Song: Japan. J. Appl. Phys*
- Umiati N A K, Irzaman, Budiman M and Barmawi M. Efek *annealing* pada penumbuhan film tipis ferroelektrik  $PbZr_{0.625}Ti_{0.375}O_3$  (PZT). In: *Kontribusi Fisika Indonesia*. 2001; vol. 12: pp. 94-98.
- Wold, A. and Dwight, K.1993. *Solid State Chemistry, Sintesis, Structure, and Properties of Selected Oxides and Sulfides*. New york : Chapman & Hall, Inc.

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## LAMPIRAN A DATA UNSUR-UNSUR

Unsur	Nomor Atom	Nomor Massa	Valensi Ion
K	19	39,102	+1
Na	11	22,9898	+1
Nb	41	92,906	+5
O	8	15,9994	-2
Bi	83	208,98	+3
Fe	26	55,845	+3

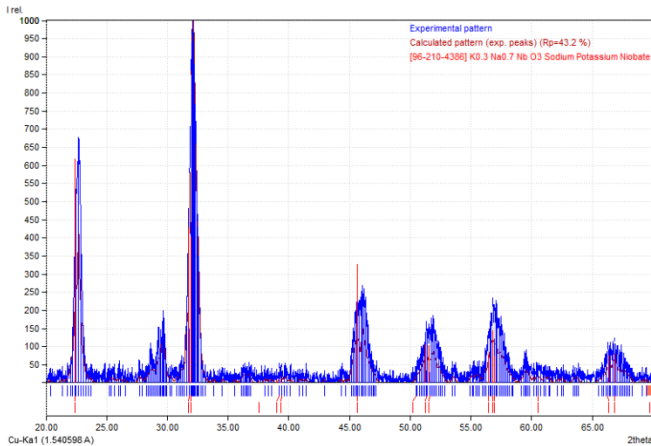
## LAMPIRAN B DATA JARI-JARI ION (Å)

Ion	Jari-jari Ion (Å)
K <sup>+</sup>	0,133
Na <sup>+</sup>	0,95
Nb <sup>5+</sup>	0,064
O <sup>2-</sup>	1,40
Bi <sup>3+</sup>	1,03
Fe <sup>3+</sup>	065

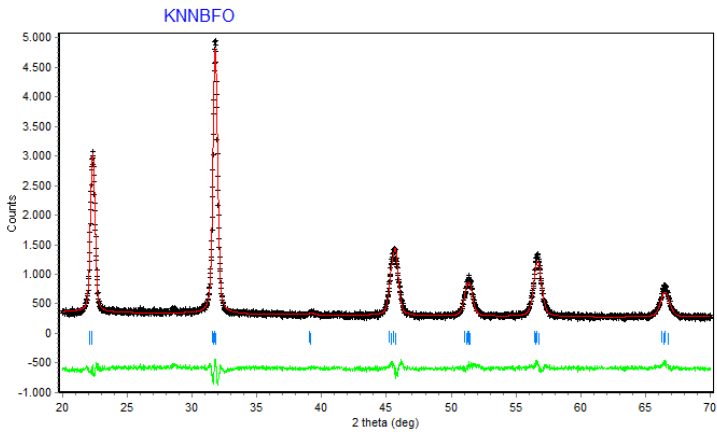
## LAMPIRAN C

### HASIL ANALISA KUALITATIF DENGAN MENGUNAKAN *SOFTWARE MATCH!*

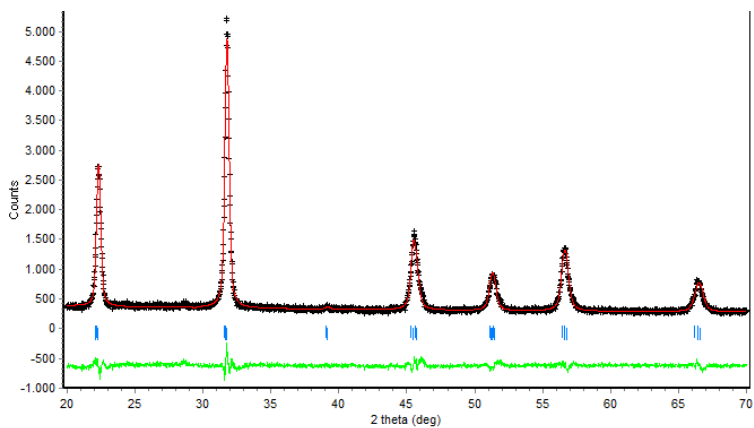
**KNN kalsinasi 700°C/2 jam**



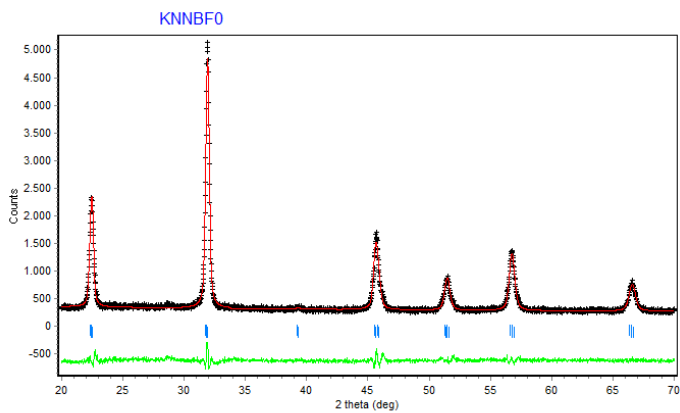
**KNNBFO x=0,025 kalsinasi 575°C/2 jam**



**KNNBFO  $x=0,05$  kalsinasi  $575^{\circ}\text{C}/2$  jam**



**KNNBFO  $x=0,075$  kalsinasi  $575^{\circ}\text{C}/2$  jam**



**LAMPIRAN D**  
**DATA COD (*CRYSTALLOGRAPHY OPEN***  
***DATABASE*) SAMPEL KNN**

**Perovskite Orthorombik**

```
#-----
#-----
#$Date: 2016-02-14 14:26:36 +0000 (Sun, 14 Feb
2016) $
#$Revision: 176435 $
#$URL: file:///home/coder/svn-
repositories/cod/cif/2/30/04/2300499.cif $
#-----
#-----
#
# This file is available in the Crystallography
Open Database (COD),
# http://www.crystallography.net/. The original
data for this entry
# were provided by IUCr Journals,
http://journals.iucr.org/.
#
# The file may be used within the scientific
community so long as
# proper attribution is given to the journal
article from which the
# data were obtained.
#
data_2300499
loop_
 _publ_author_name
 'Orayech, B.'
 'Faik, A.'
 'L\'opez, G. A.'
 'Fabelo, O.'
 'Igartua, J. M.'
 _publ_section_title
;
```

Mode-crystallography analysis of the crystal  
structures and the low- and  
high-temperature phase transitions in  
Na $\sim$ 0.5~K $\sim$ 0.5~NbO $\sim$ 3~

```

;
_journal_coeditor_code      NB5132
_journal_issue              2
_journal_name_full          'Journal of
Applied Crystallography'
_journal_page_first
;
;
_journal_paper_doi          10.1107/S1600576715000941
_journal_volume             48
_journal_year               2015
_chemical_formula_structural 'Na K (Nb O)3'
_chemical_formula_sum       'K0.5 Na0.5 Nb
O3'
_chemical_formula_weight    171.94
_chemical_name_common       'Sodium
Potassium Niobate oxide'
_chemical_name_systematic   'Sodium
Potassium Niobate oxide'
_space_group_IT_number      38
_symmetry_cell_setting      orthorhombic
_symmetry_space_group_name_Hall 'A 2 -2'
_symmetry_space_group_name_H-M 'A m m 2'
50 _angle_alpha             90.00000
   _angle_beta              90.00000
   _angle_gamma              90.00000
_cell_formula_units_Z       2
_cell_length_a               3.9443(3)
_cell_length_b               5.6425(6)
_cell_length_c               5.6763(6)
_cell_measurement_temperature 295
_cell_volume                 126.33(2)
_computing_structure_refinement FULLPROF
_diffrn_ambient_temperature 295
_diffrn_radiation_type      'Cu K\alpha'

```

```

_diffrn_radiation_wavelength      1.540560
_diffrn_source_target             Cu
_pd_instr_location                 ' ?'
_pd_meas_2theta_range_inc         0.033344
_pd_meas_2theta_range_max        110.00202
_pd_meas_2theta_range_min        8.50000
_pd_meas_number_of_points        3046
_pd_meas_scan_method              step
_pd_proc_2theta_range_inc         0.033344
_pd_proc_2theta_range_max        109.8246
_pd_proc_2theta_range_min        8.3226
_pd_proc_ls_background_function   'Set of
experimental background points'
_pd_proc_ls_pref_orient_corr      ' ?'
_pd_proc_ls_profile_function      pseudo-Voigt
_pd_proc_ls_prof_R_factor         14.7186
_pd_proc_ls_prof_wR_expected     6.0316
_pd_proc_ls_prof_wR_factor       18.8044
_pd_proc_wavelength              1.540560
_pd_spec_mounting                 ' ?'
_refine_ls_number_parameters      6
_refine_ls_number_reflns         181
_refine_ls_number_restraints     0
_refine_ls_R_I_factor            20.2129
_cod_data_source_file            nb5132sup1.cf
_cod_data_source_block           II
_cod_depositor_comments

```

```
;
```

The following automatic conversions were performed:

```

'_symmetry_cell_setting' value 'Orthorhombic'
changed to
'orthorhombic' according to
/usr/data/users/saulius/crontab/automatic-
downloads/rss-
feeds/IUCr/lib/dictionaries/cif_core.dic
dictionary named 'cif_core.dic' version 2.4.2
from 2011-04-26.

```



Automatic conversion script

Id: cif\_fix\_values 3008 2015-01-20 13:52:24Z

robertas

```
;
_cod_original_formula_sum      'K0.50 Na0.50
Nb1 O3'
_cod_database_code             2300499
#BEGIN Tags that were not found in dictionaries:
_pd_proc_ls_prof_cr_factor     31.0684
_pd_proc_ls_prof_cwr_factor    30.6076
_pd_proc_ls_prof_cwr_expected  9.8175
_pd_proc_ls_prof_chi2          9.7197
_pd_proc_ls_prof_echi2         9.7197
#END Tags that were not found in dictionaries
loop_
_symmetry_equiv_pos_as_xyz
x,y,z
-x,-y,z
-x,y,z
x,-y,z
x,y+1/2,z+1/2
-x,-y+1/2,z+1/2
-x,y+1/2,z+1/2
x,-y+1/2,z+1/2
loop_
_atom_site_label
_atom_site_fract_x
_atom_site_fract_y
_atom_site_fract_z
_atom_site_U_iso_or_equiv
_atom_site_occupancy
_atom_site_adp_type
_atom_site_type_symbol
Na1 0.00000 0.00000 0.0453(11) 0.01092 0.50000
Uiso NA
K1 0.00000 0.00000 0.0453(11) 0.01092 0.50000
Uiso K
Nb1 0.50000 0.00000 0.5251(11) 0.00758 1.00000
Uiso NB
```

```

O1 0.00000 0.00000 0.4727(11) 0.00665 1.00000
Uiso O
O1_2 0.50000 0.7535(8) 0.2285(8) 0.00665 1.00000
Uiso O
loop_
  _geom_angle_atom_site_label_1
  _geom_angle_atom_site_label_2
  _geom_angle_atom_site_label_3
  _geom_angle
  _geom_angle_site_symmetry_1
  _geom_angle_site_symmetry_3
O1 Na1 O1 98.3(3) 1_555 5_544
O1 Na1 O1 98.3(3) 1_555 5_554
O1 Na1 O1_2 66.7(3) 1_555 1_445
O1 Na1 O1_2 66.7(3) 1_555 1_545
O1 Na1 O1_2 126.4(3) 1_555 5_444
O1 Na1 O1_2 126.4(3) 1_555 5_544
O1 Na1 O1_2 163.38(4) 5_544 5_554
O1 Na1 O1_2 62.19(13) 5_544 1_445
O1 Na1 O1_2 62.19(13) 5_544 1_545
O1 Na1 O1_2 125.52(19) 5_554 1_445
O1 Na1 O1_2 125.52(19) 5_554 1_545
O1 Na1 O1_2 56.41(13) 5_554 5_444
O1 Na1 O1_2 56.41(13) 5_554 5_544
O1_2 Na1 O1_2 97.27(12) 1_445 1_545
O1_2 Na1 O1_2 89.8(2) 1_445 5_444
O1_2 Na1 O1_2 166.9(2) 1_445 5_544
O1_2 Na1 O1_2 166.9(2) 1_545 5_444
O1_2 Na1 O1_2 89.8(2) 1_545 5_544
O1_2 Na1 O1_2 81.28(14) 5_444 5_544
O1 K1 O1 98.3(3) 1_555 5_544
O1 K1 O1 98.3(3) 1_555 5_554
O1 K1 O1_2 66.7(3) 1_555 1_445
O1 K1 O1_2 66.7(3) 1_555 1_545
O1 K1 O1_2 126.4(3) 1_555 5_444
O1 K1 O1_2 126.4(3) 1_555 5_544
O1 K1 O1_2 163.38(4) 5_544 5_554
O1 K1 O1_2 62.19(13) 5_544 1_445
O1 K1 O1_2 62.19(13) 5_544 1_545
O1 K1 O1_2 125.52(19) 5_554 1_445

```

```

O1 K1 O1_2 125.52(19) 5_554 1_545
O1 K1 O1_2 56.41(13) 5_554 5_444
O1 K1 O1_2 56.41(13) 5_554 5_544
O1_2 K1 O1_2 97.27(12) 1_445 1_545
O1_2 K1 O1_2 89.8(2) 1_445 5_444
O1_2 K1 O1_2 166.9(2) 1_445 5_544
O1_2 K1 O1_2 166.9(2) 1_545 5_444
O1_2 K1 O1_2 89.8(2) 1_545 5_544
O1_2 K1 O1_2 81.28(14) 5_444 5_544
54 O1 162.85(6) 1_555 1_655
O1_2 83.4(2) 1_555 1_545
O1_2 95.4(3) 1_555 5_545
O1 Nb1 O1_2 83.4(2) 1_655 1_545
O1 Nb1 O1_2 95.4(3) 1_655 5_545
O1_2 Nb1 O1_2 168.5(4) 1_545 5_545
O1 Nb1 O1_2 83.4(2) 1_555 1_545
O1 Nb1 O1_2 95.4(3) 1_555 5_545
loop_
_geom_bond
_d_atom_site_label_1
_geom_bond_atom_site_label_2
_geom_bond_distance
_geom_bond_site_symmetry_2
Na1 O1 2.8512(13) 5_544
Na1 O1 2.8512(13) 5_554
Na1 O1_2 2.628(4) 1_445
Na1 O1_2 2.628(4) 1_545
Na1 O1_2 3.028(5) 5_444
Na1 O1_2 3.028(5) 5_544
Nb1 O1 1.9945(13) 1_555
Nb1 O1 1.9945(13) 1_655
Nb1 O1_2 2.184(7) 1_545
Nb1 O1_2 1.838(6) 5_545
Nb1 O1_2 1.838(6) 5_545
Nb1 O1_2 2.184(7) 1_545
K1 O1 2.8512(13) 5_544
K1 O1 2.8512(13) 5_554
K1 O1_2 2.628(4) 1_445
K1 O1_2 2.628(4) 1_545
K1 O1_2 3.028(5) 5_

```

## Perovskite Tetragonal

```
#-----  
-----  
#$Date: 2016-02-14 14:26:36 +0000 (Sun, 14 Feb  
2016) $  
#$Revision: 176435 $  
#$URL: file:///home/coder/svn-  
repositories/cod/cif/2/10/42/2104294.cif $  
#-----  
-----  
#  
# This file is available in the Crystallography  
Open Database (COD),  
# http://www.crystallography.net/. The original  
data for this entry  
# were provided by IUCr Journals,  
http://journals.iucr.org/.  
#  
# The file may be used within the scientific  
community so long as  
# proper attribution is given to the journal  
article from which the  
# data were obtained.  
#  
data_2104294  
loop_  
_publ_author_name  
'Baker, D. W.'  
'Thomas, P. A.'  
'Zhang, N.'  
'Glazer, A. M.'  
_section_title  
56  
    Structural study of  $K_{x-1}Na_1\{-$   
     $\frac{1}{2}NbO_3\}$  (KNN) for  
    compositions in the range  $x = 0.24-0.36$   
;  
_journal_issue 1  
_journal_name_full 'Acta  
Crystallographica Section B'
```

_journal_page_first	22
_journal_page_last	28
_journal_paper_doi	
10.1107/S0108768108037361	
_journal_volume	65
_journal_year	2009
_chemical_formula_iupac	'K0.3 Na0.7 Nb
O3'	
_chemical_formula_moiety	'Nb O3,
8 (K0.0375 Na0.0875) '	
_chemical_formula_sum	'K0.3 Na0.7 Nb
O3'	
_chemical_formula_weight	168.73
_space_group_crystal_system	tetragonal
_space_group_IT_number	99
_symmetry_space_group_name_Hall	'P 4 -2'
_symmetry_space_group_name_H-M	'P 4 m m'
_cell_angle_alpha	90
_cell_angle_beta	90
_cell_angle_gamma	90
_cell_formula_units_Z	1
_cell_length_a	3.950920 (10)
_cell_length_b	3.950920 (10)
_cell_length_c	4.00852 (2)
_cell_measurement_temperature	523
_cell_volume	62.5721 (4)
_diffrn_ambient_temperature	523
_diffrn_measurement_device_type	HRPD
_diffrn_radiation_probe	neutron
_diffrn_radiation_source	spallation
_diffrn_radiation_type	neutron
_exptl_crystal_density_diffrn	4.478
_exptl_crystal_F_000	78.4
_refine_ls_goodness_of_fit_all	0.526
_refine_ls_number_parameters	24
_cod_data_source_file	kd5027.cif
_cod_data_source_block	523K
_cod_original_formula_sum	'K0.30 Na0.70
Nb O3'	
_cod_database_code	2104294

```

loop_
_symmetry_equiv_pos_site_id
_symmetry_equiv_pos_as_xyz
1 x,y,z
2 -y,x,z
3 -x,-y,z
4 y,-x,z
5 -x,y,z
6 -y,-x,z
7 x,-y,z
8 y,x,z
loop_
_atom_site_aniso_label
_atom_site_aniso_U_11
_atom_site_aniso_U_22
_atom_site_aniso_U_33
_atom_site_aniso_U_12
_atom_site_aniso_U_13
_atom_site_aniso_U_23
O1 0.0307(11) 0.0307(11) 0.046(3) 0 0 0
58 O2 0.0307(11) 0.0307(11) 0.046(3) 0 0 0
O3 0.0101(4) 0.0101(4) 0.014(3) 0 0 0
O4 0.0248(8) 0.0248(8) 0.023(3) 0 0 0
O2 0.0175(7) 0.0175(7) 0.031(3) -0.0014(6) 0 0
loop_
_atom_site_type_symbol
_atom_site_label
_atom_site_fract_x
_atom_site_fract_y
_atom_site_fract_z
_atom_site_U_iso_or_equiv
_atom_site_occupancy
Na Na1 0 0 0 0.0357 0.7
K K1 0 0 0 0.0357 0.3
Nb Nb1 0.5 0.5 0.492(11) 0.0114 1
O O1 0.5 0.5 0.038(10) 0.0241 1
O O2 0.5 0 0.539(10) 0.0221 1
loop_
_geom_angle_atom_site_label_1
_geom_angle_atom_site_label_2

```

```

_geom_angle_atom_site_label_3
_geom_angle_site_symmetry_1
_geom_angle_site_symmetry_2
_geom_angle_site_symmetry_3
_geom_angle
_geom_angle_publ_flag
O1 Nb1 O1 1_556 . . 180 y
O2 Nb1 O2 2_555 . 2_655 169.(3) y
O2 Nb1 O2 1_555 . 1_565 169.(3) y
loop_
_geom_bond_atom_site_label_1
_geom_bond_atom_site_label_2
_geom_bond_site_symmetry_1
_geom_bond_site_symmetry_2
_geom_bond_distance
_geom_bond_publ_flag
Nb1 O1 . . 1.82(6) y
Nb1 O2 . . 1.984(6) y

```

## BIOGRAFI PENULIS



Penulis “Nurul Amalia Triyuliana” merupakan anak ke 3 dari 4 bersaudara yang lahir di Kota Sampang pada 8 Juli 1995. Semasa kecil penulis menempuh pendidikan formal antara lain di TK Banyuanyar 1 Sampang, SD Negeri Banyuanyar 1 Sampang, Mts Al-amien 1 Prenduan Sumenep, dan SMA Negeri 1 Sampang. Semasa kecil penulis mendapatkan pendidikan non formal di Taman Pendidikan Al-Qur'an (TPQ) Masjid Jami'Sampang dan pondok pesantren Al-amien.

Penulis memulai pendidikan S1 di Jurusan Fisika ITS pada tahun 2013 dan menyelesaikan Tugas Akhir pada semester 8. Selama mengenyam pendidikan S1 di Jurusan Fisika ITS, penulis turut berkontribusi dalam bidang akademik dan organisasi. pengembangan Laboratorium Fisika Dasar (2015-2016) dan Asisten Dosen Fisika Dasar 1 dan 2 (2016-2017). Penulis juga berpartisipasi dalam bidang pengabdian masyarakat dan penelitian yaitu dalam hal program hibah PKM DIKTI yang dibuktikan dengan didanainya PKM Pengabdian Masyarakat pada pendanaan DIKTI 2014 dan PKM Penelitian pada pendanaan DIKTI 2017. Selain itu, penulis juga aktif dalam Organisasi Intra ataupun ekstra Kampus yaitu menjabat sebagai Staf Kajian Strategis Himasika ITS (2014-2015), Asisten direktur *Competency Development* Himasika ITS (2015-2016) serta aktif dalam Forum Mahasiswa Sampang. Dengan adanya tulisan Tugas Akhir ini, penulis berharap akan adanya pengembangan penelitian material berstruktur perovskite lebih lanjut sehingga dapat berguna bagi keberlangsungan kehidupan yang lebih baik. Kritik dan saran yang membangun dapat ditujukan ke email: triyuliana40@gmail.com